

THÈSES

PRESENTEES
A LA FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE NANCY I
POUR OBTENIR
LE TITRE DE DOCTEUR-INGENIEUR
PAR

Jean-Pierre REYNIER

INGENIEUR E.H.E.I.
INGENIEUR E.N.S.P.M.
LICENCE ES SCIENCES

Première thèse

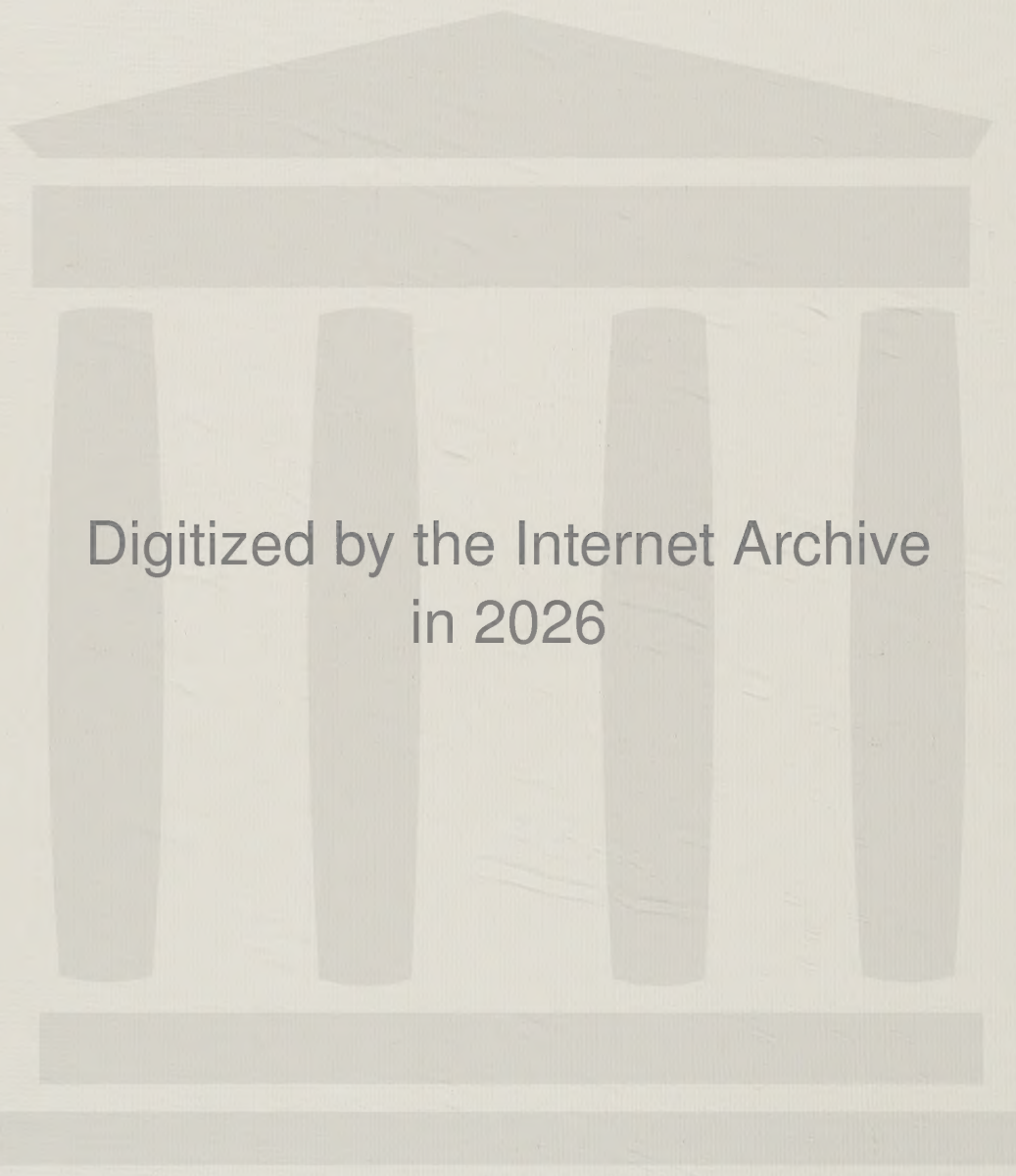
ÉCOULEMENT CO-COURANT LIQUIDE-LIQUIDE
DANS LES GARNISSAGES :
HYDRODYNAMIQUE, MÉLANGE AXIAL, TRANSFERT DE MATIÈRE

Deuxième thèse

PROPOSITION DONNÉE PAR LA FACULTE

Soutenues le 10 novembre 1971 devant la Commission d'Examen

MM. les professeurs	P. LE GOFF		Président
	J. VILLERMAUX	...	} Examineurs
	C. PROST		
	M. D. DEFIVES		Invité



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551918_0004

THÈSES

PRESENTEES
A LA FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE NANCY I
POUR OBTENIR
LE TITRE DE DOCTEUR-INGENIEUR
PAR

Jean-Pierre REYNIER

INGENIEUR E.H.E.I.
INGENIEUR E.N.S.P.M.
LICENCIE ES SCIENCES

Première thèse

**ECOULEMENT CO-COURANT LIQUIDE-LIQUIDE
DANS LES GARNISSAGES :
HYDRODYNAMIQUE, MELANGE AXIAL, TRANSFERT DE MATIERE**

Deuxième thèse

PROPOSITION DONNEE PAR LA FACULTE

Soutenues le 10 novembre 1971 devant la Commission d'Examen

MM. les professeurs	P. LE GOFF		Président
	J. VILLERMAUX	...	} Examineurs
	C. PROST		
	M. D. DEFIVES		Invité

A MARYSE

A ALBANE

A CANDICE

Je prie Monsieur le Professeur P. LE GOFF d'agréer mes sincères remerciements pour ses conseils et le réel intérêt qu'il a porté à ce travail.

Je remercie Messieurs les Professeurs J. VILLERMAUX et C. PROST pour avoir bien voulu faire partie du jury.

J'adresse mes remerciements à Monsieur D. DEFIVES pour le bienveillant intérêt qu'il a porté à ce travail.

Qu'il me soit permis de remercier vivement A. ROJEY de ses suggestions avisées et de son aide constante. La part active qu'il a prise à l'élaboration de cette thèse m'a permis de mener à bien ce travail.

Par l'intermédiaire de Messieurs J. DURANDET et H. RENON, je remercie l'INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE qui m'a fourni les moyens matériels d'effectuer ce travail.

Je remercie également les ingénieurs et les techniciens de la division et en particulier G. DESCHAMPS, de même que l'ensemble de mes collègues thésards et plus particulièrement G. MAFFIOLO pour son amical soutien.

Enfin, je tiens à associer à ces remerciements le personnel du secrétariat et en particulier Mademoiselle M. LECOINTRE pour le soin qu'elle a apporté à la dactylographie du manuscrit.



- PLAN GENERAL* -

<u>NOTATIONS.....</u>	3
<u>LISTE DES FIGURES.....</u>	11
<u>LISTE DES TABLEAUX.....</u>	13
<u>INTRODUCTION GENERALE.....</u>	15
<u>CHAPITRE I - APPAREILLAGES ET PHENOMENE OBSERVE.....</u>	19
<u>CHAPITRE II - RETENTIONS ET PERTES DE CHARGE.....</u>	31
<u>CHAPITRE III - MELANGE AXIAL.....</u>	101
<u>CHAPITRE IV - TRANSFERT DE MATIERE.....</u>	163
<u>CONCLUSION GENERALE.....</u>	231
<u>ANNEXES.....</u>	233
<u>BIBLIOGRAPHIE.....</u>	257

* Les plans détaillés sont au début des chapitres

- NOTATIONS -

a	Aire interfaciale spécifique (cm ⁻¹)
A, B	Coefficients définis par l'équation (II-32)
A	Constante définie par l'équation (B-4)
c	Concentration
c^*	Concentration en équilibre $c_1^* = m c_2$
c'	Fraction massique (% poids)
C	Concentration réduite $C_1 = \frac{c_1 - c_{1e}^*}{c_{1e} - c_{1e}^*}$
C^*	Concentration réduite en équilibre $C_1^* = \frac{c_2 - c_{2e}}{c_{1e} - c_{1e}^*} = \frac{c_1^* - c_{1e}^*}{c_{1e} - c_{1e}^*}$
$C(t)$	Distribution des temps de séjour normée $\int_0^\infty C(t) dt = 1$ (Ch. III)
C_{expj}	Coordonnées des points expérimentaux (Annexe C)
C_j^P	Valeurs calculées par un modèle pour les valeurs p_i des paramètres (Annexe C)
d_e	Diamètre équivalent de Carman (cf. 2.12 a) (cm)
D_g	Diamètre équivalent de la particule = $6/S_g$ (cm)
D_j	= $C_{\text{expj}} - C_j^P$ (Annexe C)
d_p	Diamètre nominal de la particule (cf. 2.12 a) (cm)
D_p	Diamètre hydraulique du pore = $\frac{4 \epsilon}{S_g (1 - \epsilon)}$ (cm)

E	Coefficient de diffusion caractérisant le mélange axial avec le modèle diffusionnel (cm^2/s)
E_C	Efficacité pour un contre-courant
E_D	Efficacité en diagonale pour un contre-courant
E_H	Efficacité de Hausen (co-courant)
E_M	Efficacité de Murphree
$\text{erf}(x)$	Fonction d'erreur = $\frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$
$\text{erfc}(x)$	Complémentaire de la fonction d'erreur = $1 - \text{erf}(x)$
$\exp(x)$	Fonction exponentielle = e^x
$f(t, z)$	Fonction de distribution
g	Accélération de la pesanteur = 981 cm/s^2
h	Dénivellation manométrique (cm)
h_1, h_2	Hauteurs manométriques (cm)
h_a	Fréquence d'arrêt moyenne des gouttes (s^{-1})
h_d	Fréquence de départ moyenne des gouttes (s^{-1})
HTU	Hauteur équivalente à une unité de transfert (cm)
$I_1(x)$	Fonction de Bessel modifiée de première espèce
J	Défini par l'équation (II-7)
J_u	Défini par l'équation (II-7)

K_0	Coefficient de transfert de matière global (cm/s)
K_1, K_2	Coefficient de l'équation d'Ergun
L	Longueur de la colonne (cm)
$\ln$	Logarithme népérien
$\mathcal{L}$	Libre parcours moyen des gouttes = $v/h_a = v \overline{\Delta t_m}$ (cm)
m	Coefficient de partage en concentration
m'	Coefficient de partage en fraction massique
m_e	Masse à l'entrée, méthode d'impulsion
m_s	Masse à la sortie, méthode d'impulsion
N	Nombre d'unités de transfert caractérisant l'échange entre les zones stagnantes et la partie dynamique de l'écoulement - Modèles PE et PDE
n	Nombre de mélangeurs parfaits en série
N_1	Nombre d'unités de transfert global rapporté à la phase 1
N'_1	Nombre d'unités de transfert corrigé pour le modèle statistique rapporté à la phase 1
p	Variable de Laplace
p'	Equation (IV-48)
P_1, P_2	Pressions aux points 1, 2
Pe	Nombre de Peclet = UL/E
p_i	Paramètres à optimiser (Annexe C)
P_r	Probabilité équation (III-14)

Q	Débit volumique (cm^3/s)
r	Nombre d'arrêts d'une goutte
$\bar{r}$	Nombre d'arrêts moyen pour toutes les gouttes
r'	$= r - 1$
Re	Nombre de Reynolds $= \frac{D_g \rho U_o}{\mu}$
Re'	Nombre de Reynolds corrigé $= \text{Re}/(1 - \epsilon)$
S_g	Surface spécifique de l'élément (cm^{-1})
S_L	Surface spécifique du lit (cm^{-1})
SQ	Somme des carrés des écarts (cf. Annexe C)
t	Temps de séjour (s)
$\bar{t}$	Temps de séjour moyen (s)
t_{am}	Temps d'arrêt moyen $= 1/h_d = \overline{\Delta t_s}$ (s)
t_{expj}	Coordonnées des points expérimentaux (Annexe C)
t_m	Temps que passent les gouttes en phase mobile $= z/v = \bar{t}_m$ (s)
TM	$= t_m/\bar{t} = \text{fraction de phase dynamique}$
t_s	Temps d'arrêt total d'une goutte (s)
U	Vitesse vraie d'une phase $= U_o/(\epsilon x)$
U_o	Vitesse dans la colonne vide

v	Vitesse réelle des gouttes = $U_{OD}/\epsilon \times d$ (cm/s)
V_o	Vitesse caractéristique de déplacement des gouttes (cf. 2.23) (cm/s)
V_D	Variance centrée réduite = $\left(\frac{\sigma}{\bar{t}}\right)^2$
x	Rétention = fraction volumique d'une phase dans un appareil
X	$= \sqrt{4 h_a h_d t_m t_s}$
z	Abscisse le long de la colonne (cm)
Z	Abscisse réduite = z/L

LETTRES GRECQUES

α	Angle au centre définissant la répartition des phases dans un pore
$\Gamma(x)$	Fonction gamma = $\int_0^{\infty} t^{x-1} e^{-t} dt$
ΔL	Longueur moyenne du parcours élémentaire (cm)
ΔP	Différence de pression (barye)
Δt_m	Durée moyenne de chaque parcours élémentaire (s)
$\overline{\Delta t_m}$	Temps de parcours moyen pour toutes les gouttes = $\mathcal{L}/v$ (s)
Δt_s	Durée moyenne de chaque arrêt élémentaire (s)
$\overline{\Delta t_s}$	Temps d'arrêt moyen pour toutes les gouttes (s)
$\Delta \rho$	Différence de densité = $\rho_2 - \rho_1$ ou = $\rho_L - \rho_G$ (g/cm ³)

δ	Fonction de Dirac unité
ε	Porosité
Λ	Facteur d'extraction = $m Q_1/Q_2$
μ	Viscosité (Poise)
μ_n	Moment d'ordre n
ν	Viscosité cinématique = μ/ρ (Stokes)
ψ_r	Probabilité équation (III-13)
Ψ	Sphéricité d'un élément de garnissage (cf. 2.12 a)
ρ	Masse volumique (g/cm^3)
ρ_m	Masse volumique moyenne = $x_1 \rho_1 + (1 - x_1) \rho_2$ (g/cm^3)
σ	Ecart type
σ^2	Variance centrée
τ	= $L\varepsilon/U_{oD}$
φ	Fraction de phase dynamique - Modèles PE et PDE
χ	Paramètre de Lockart Martinelli = $\sqrt{\frac{\Delta P_L}{\Delta P_G}}$
χ	Défini par l'équation (D-8)
$\ominus$	Opérateur (Annexe D)

INDICES

1	Phase légère ou phase 1
2	Phase lourde ou phase 2
C	Phase continue
D	Phase dispersée

D	Dynamique (rétention)
d	Dû à la dispersion (nombre d'unités de transfert)
e	Concentration à l'entrée
e	Elémentaire
f	Concentration si les deux phases sont en équilibre à la sortie
F	Frictionnelle
G	Phase gaz
g	Global
i	Pour un mélangeur parfait
L	Phase liquide
p	Pour un écoulement piston
s	Stationnaire (rétention)
s	Concentration à la sortie
t, T	Total
v	Vrai (nombre d'unités de transfert)

EXPOSANTS

'	En écoulement diphasique
$\bar{y}$	Transformée de Laplace de y
$\tilde{y}$	Valeur moyenne de y

- L I S T E D E S F I G U R E S -

1	- SCHEMA DE LA COLONNE DE 15 CM DE DIAMETRE.....	25
2a	- PERTE DE CHARGE - ECOULEMENT MONOPHASIQUE.....	37
2b	- DIFFERENCE DE PRESSION - ECOULEMENT DIPHASIQUE.....	37
3	- VERIFICATION DE L'EQUATION D'ERGUN AVEC DIFFERENTS LIQUIDES.....	43
4	- RETENTIONS - COLONNE DE 15 CM DE DIAMETRE.....	49
5	- RETENTIONS - ENSEMBLE DES RESULTATS POUR UNE SERIE.....	51
6	- COMPARAISON DES MESURES DE TEMPS DE SEJOUR DANS CHAQUE PHASE.....	53
7	- PERTE DE PRESSION TOTALE (COLONNE DE 15 CM).....	55
8	- PERTE DE PRESSION - MODELE DE SWEENEY (COLONNE DE 5 CM).....	63
9	- RETENTION TOTALE - MODELE DE SWEENEY (COLONNE DE 5 CM).....	65
10	- ECOULEMENT STRATIFIE DANS UN PORE.....	69
11	- PERTE DE PRESSION - MODELE DU PORE STRATIFIE (COLONNE DE 5 CM).....	73
12	- COMPARAISON ENTRE PERTE DE PRESSION EXPERIMENTALE ET CALCULEE PAR LE MODELE DU PORE STRATIFIE.....	75
13	- RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE - ANNEAUX PALL EN POLYTHENE...	77
14	- EXEMPLE DE RESULTATS DE RETENTION.....	81
15	- RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE - ANNEAUX PALL ACIER.....	83
16	- RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE - ANNEAUX RASCHIG.....	85
17	- RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE - PALL PLASTIQUE - COURANT DESCENDANT.....	87
18	- RESULTATS DU MODELE DU PORE STRATIFIE POUR LA COLONNE DE 15 CM.....	91
19	- MODELE DU PORE STRATIFIE - ECOULEMENTS GAZ-LIQUIDE.....	93
20	- RETENTION STATIONNAIRE OBTENUE A PARTIR DE LA MESURE DU GRADIENT DE PRESSION.....	97
21	- RESULTATS AVEC LE MODELE PDE.....	113
22	- RESULTATS AVEC LE MODELE PDE.....	115
23	- ECHANTILLONNAGE DE LA PHASE DISPERSEE.....	121
24	- NOMBRE DE PECLLET - PHASE DISPERSEE.....	123
25	- EXEMPLE DE COURBE EXPERIMENTALE DE DTS EN PHASE DISPERSEE.....	125

26 - BILAN DES INJECTIONS DE MIBK DANS L'ISOOCTANE.....	129
27 - ECHANTILLONNAGE DE LA PHASE CONTINUE.....	131
28 - NOMBRE DE PECLET - PHASE CONTINUE.....	133
29 - NOMBRE DE PECLET - PHASE CONTINUE - $U_{oC} = 0,723 \text{ cm/s}$	135
30 - RETENTION TOTALE OBTENUE PAR LE MODELE SM ET LE MODELE PD.....	145
31 - OPTIMISATION AVEC LE MODELE STATISTIQUE.....	147
32 - OPTIMISATION AVEC LE MODELE PD.....	149
33 - LIBRE PARCOURS MOYEN ET TEMPS D'ARRET MOYEN.....	151
34 - EXEMPLE DE RETENTION TOTALE ET STATIONNAIRE.....	153
35 - COMPARAISON DE L'ESTIMATION DE LA RETENTION STATIONNAIRE PAR LE MODELE STATISTIQUE ET PAR LE MODELE DU PORE STRATIFIE.....	155
36 - MELANGE AXIAL - ECOULEMENT MONOPHASIQUE.....	159
37 - REPRESENTATION GRAPHIQUE D'UN TRANSFERT A CO-COURANT.....	169
38 - REPRESENTATION GRAPHIQUE D'UN TRANSFERT A CONTRE-COURANT.....	173
39 - EXEMPLE DE MESURES D'EFFICACITE.....	183
40 - EFFICACITES DE MURPHREE PAR RAPPORT A LA PHASE CONTINUE.....	187
41 - NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT PAR RAPPORT A LA PHASE DISPERSEE (ECOULEMENT PISTON).....	189
42 - EFFICACITES DE MURPHREE EN FONCTION DU TEMPS DE SEJOUR.....	191
43 - PROFILS DE CONCENTRATIONS - ECOULEMENT PISTON ET MODELE PD.....	195
44 - COMPARAISON DU NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT VRAI ET DU NOMBRE D'U- NITES DE TRANSFERT APPARENT.....	207
45 - COMPARAISON DES EFFICACITES OBTENUES PAR LES MODELES PD ET SM.....	211
46 - COMPARAISON DES EFFICACITES OBTENUES PAR LES MODELES PD ET SM.....	213
47 - EVOLUTION DES COURBES DE SORTIE A VARIANCE CONSTANTE AVEC T_M	215
48 - PROFILS DE CONCENTRATIONS - MODELE PD ET SM.....	219
49 - PROFILS DE CONCENTRATIONS - MODELE PD ET SM.....	221
50 - PROFILS DE CONCENTRATIONS - MODELE PD ET SM.....	223
51 - $K_{oD} Q / x_T$ EN FONCTION DE LA VITESSE TOTALE.....	227
52 - ETALONNAGE DE L'UVICORD II AVEC LE BENZENE ET LA MIBK.....	237
53 - CHROMATOGRAPHIE - METHODE DE L'ETALON INTERNE.....	239
54 - COEFFICIENT DE PARTAGE - COMPARAISON AVEC LA LITTERATURE.....	241
55 - COEFFICIENT DE PARTAGE - MEK ENTRE L'EAU ET L'ISOOCTANE.....	243

- L I S T E D E S T A B L E A U X -

I - <u>PROPRIETES DES FLUIDES</u>	29
II - <u>RESULTATS DE LA LITTERATURE POUR LES COEFFICIENTS K_1 ET K_2</u>	41
III - <u>ECARTS TYPE SUR LES PERTES DE PRESSION - MODELE DU PORE STRATIFIE</u> <u>ET MODELE DE SWEENEY</u>	79
IV - <u>CARACTERISTIQUES DES LITS UTILISES POUR L'ECOULEMENT GAZ-LIQUIDE</u>	90
V - <u>MODELES DE DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR A UN PARAMETRE</u>	109
VI - <u>COMPARAISON ENTRE LES MODELES SM, PE, PD ET PDE</u>	118
VII - <u>COMPARAISON DES VALEURS DE Pe_c A CO-COURANT AVEC CELLES QUE L'ON</u> <u>OBTIENDRAIT [P 1] DANS LES MEMES CONDITIONS A CONTRE-COURANT</u>	161
VIII - <u>RELATIONS POUR LES ECOULEMENTS PISTONS</u>	178
IX - <u>RESULTATS D'EFFICACITES</u>	182
X - <u>ENSEMBLE DES RESULTATS DE LA COLONNE DE 15 CM</u>	205
XI - <u>NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT VRAI ET APPARENT</u>	206

- INTRODUCTION GÉNÉRALE -

Les extracteurs liquide-liquide à contact parallèle utilisés dans l'industrie fonctionnent généralement à contre-courant. Mais ce type de colonne est limité en capacité par l'engorgement et est difficile à extrapoler. En effet, pour une colonne de grand diamètre, il devient malaisé de réaliser un écoulement uniforme des liquides sur une grande longueur. Par contre un tel appareil peut être équivalent à plusieurs étages théoriques.

Utilisée à co-courant, une colonne à remplissage ne sera équivalente au plus qu'à un seul étage théorique mais ne sera plus sujette aux limitations dues à l'engorgement. D'autre part, le mélange axial sera plus faible que pour le même appareil fonctionnant à contre-courant, surtout pour la phase continue. Pour réaliser plusieurs étages théoriques, il est possible de monter à contre-courant un ensemble d'éléments de remplissage fonctionnant à co-courant.

Pour pouvoir dimensionner une telle colonne, il est nécessaire de disposer d'un ensemble de données sur l'hydrodynamique des écoulements à co-courant liquide-liquide et sur le transfert entre phases. L'efficacité du contact entre les deux phases dépend de l'aire interfaciale (reliée à la rétention de phase dispersée) et du mélange axial dans chaque phase.

Pour représenter et prévoir ces quantités, il faut schématiser le phénomène expérimental complexe au moyen de modèles comportant un nombre restreint de paramètres.

Nous avons cherché à rendre compte de l'écoulement observé. L'écoulement de la phase dispersée dans les lits que nous avons utilisés se fait de deux manières : sous forme de gouttes s'arrêtant de manière aléatoire

pour repartir au bout d'un temps variable et sous forme de filets s'écoulant dans les interstices de l'empilement.

Pour représenter le mélange axial, un modèle de gouttes est le plus approprié car on observe que la distribution des temps de séjour est surtout due à un phénomène aléatoire d'arrêt et de départ des gouttes de phase dispersée.

Pour la prévision de la rétention et des pertes de charge, il n'a pas été possible de rendre compte des résultats expérimentaux à l'aide d'un modèle de gouttes. Par contre on a obtenu de bons résultats en considérant un modèle de filets.

Le premier chapitre comporte la description du matériel, les propriétés des fluides et les caractéristiques des colonnes, de même que la description du phénomène expérimental. Les techniques de mesures seront présentées au fur et à mesure des chapitres.

Le deuxième chapitre est consacré à l'hydrodynamique : perte de charge en écoulement monophasique, différence de pression et rétention en écoulement diphasique. Après l'examen des différents modèles et corrélations, on présente un modèle de filets (pore stratifié sans interaction) pour prévoir ces quantités.

La troisième partie traite de la distribution des temps de séjour dans chaque phase. Après la revue des modèles déjà étudiés, on examine un modèle statistique représentant bien les courbes expérimentales obtenues pour la phase dispersée et permettant de calculer, non seulement la rétention totale mais également la rétention stationnaire. Ce modèle présente en outre l'avantage d'utiliser des paramètres ayant une signification physique.

L'étude du transfert de matière est faite dans la dernière partie consacrée aux mesures de l'efficacité et au calcul du coefficient de transfert. On y présente un modèle, utilisant pour le mélange axial de la phase dispersée le modèle statistique et applicable aux écoulements à co-courant et à contre-courant.

Dans toute l'étude, la rétention stationnaire que l'on peut observer expérimentalement représente un paramètre important et intervient dans les trois modèles proposés : modèle du pore stratifié pour l'hydrodynamique, modèle statistique pour le mélange axial de la phase dispersée et modèle permettant le calcul du coefficient de transfert.

L'écoulement co-courant liquide-liquide dans une colonne à garnissage n'a jamais fait l'objet d'une étude complète. Seuls Rigg et Churchill [R 6] et Leacock et Churchill [L 4] ont publié des articles sur ce sujet. Les premiers se sont surtout intéressés à la rétention et à la taille des gouttes, les seconds ont mesuré l'efficacité d'un tel écoulement. Par contre, pour deux liquides s'écoulant à contre-courant dans un garnissage, de nombreux travaux ont été publiés [G 1, G 2, H 3, J 1, V 4, V 5] de même que pour le co-courant gaz-liquide [B 1, C 3, C 4, G 3, L 1, L 2, R 1, T 1, V 1, V 6] .

- CHAPITRE I -

APPAREILLAGES ET PHENOMENE OBSERVE

- P L A N -

<u>INTRODUCTION.....</u>	21
<u>1.1 - DESCRIPTION DES COLONNES ET MESURES EFFECTUEES.....</u>	22
1.11 - <u>Colonnes de 5 cm de diamètre.....</u>	22
1.12 - <u>Colonne de 15 cm de diamètre.....</u>	23
<u>1.2 - PROPRIETES DU GARNISSAGE ET DES FLUIDES.....</u>	27
1.21 - <u>Caractéristiques du garnissage.....</u>	27
1.22 - <u>Propriétés des fluides.....</u>	28
<u>1.3 - PHENOMENE OBSERVE.....</u>	30

I N T R O D U C T I O N

Ce chapitre est consacré à une étude de l'appareillage comprenant tout d'abord une description du matériel utilisé. Les mesures ont été effectuées sur des colonnes de diamètres différents : 5 cm et 15 cm, le garnissage étant toujours constitué par des anneaux Pall en polyéthylène de 15 x 15 mm. Les liquides ont été le plus souvent l'eau et l'isooctane mais nous avons également utilisé l'heptane, la décaline, etc.

Les techniques de mesures des pertes de pression, de la rétention, du mélange axial et du transfert de matière seront passées en revue dans chaque chapitre. De manière générale, ces techniques ont été mises au point avec deux soucis principaux. Tout d'abord, toujours mesurer uniquement ce qui se passe dans le garnissage et lorsque cela était impossible, éliminer de la mesure l'influence du décanteur ; d'autre part rechercher la précision maximale. Malgré cela, on se rendra compte que l'incertitude est souvent importante (rarement moins de 10 %).

1.1 - DESCRIPTION DES COLONNES ET MESURES EFFECTUEES

Le diamètre de 15 cm a été choisi de façon à éviter l'effet de bord. Il est en effet conseillé d'utiliser un rapport de 1 à 10 entre le diamètre du garnissage et le diamètre de la colonne (Lespinasse [L 5]). Il faut remarquer en outre que les anneaux Pall ont une grande porosité et sont très ouverts, ce qui doit diminuer l'effet de bord.

Les colonnes de petit diamètre ont surtout été utilisées pour mettre au point les mesures. En effet, en raison de leurs faibles dimensions, elles sont beaucoup plus facilement utilisables.

1.11 - Colonnes de 5 cm de diamètre

Elles sont de deux types selon que le décanteur est immédiatement sous le garnissage comme pour la colonne de 15 cm (voir Figure 1) ou à côté de la colonne. Les débits sont stabilisés au moyen de bacs en charge (avec déversoir) à la sortie desquels une vanne à aiguille régule le débit. Les mesures sont effectuées au moyen de rotamètres étalonnés.

Les mesures qui ont été effectuées sur ces colonnes sont :

- perte de charge en écoulement monophasique pour différents liquides en particulier : eau, heptane, décaline, éthylène glycol pour des nombres de Reynolds corrigés $Re' = \frac{D_g \rho u}{(1 - \epsilon)\mu}$ allant de 3 à 800.
- rétention et perte de charge en écoulement diphasique pour les couples (vitesse par rapport à la colonne vide) :

- . eau (0,25 à 1,75 cm/s) - isooctane (0,22 à 1,31 cm/s)
 - . eau (0,25 à 1,5 cm/s) - décaline (0,18 à 1,21 cm/s)
- rétention, perte de pression et dispersion axiale pour :
- . eau (0,5 à 4,16 cm/s) - heptane (0,48 à 3,71 cm/s)
- les mesures d'efficacité ont été également testées sur ce type de colonnes.

1.12 - Colonne de 15 cm de diamètre

Cet appareil, schématisé sur la figure 1, a 4 mètres de haut et est rempli d'anneaux Pall en polyéthylène sur 1,75 mètre. La colonne est constituée d'éléments en verre Pyrex EIVS de 15 cm de diamètre intérieur.

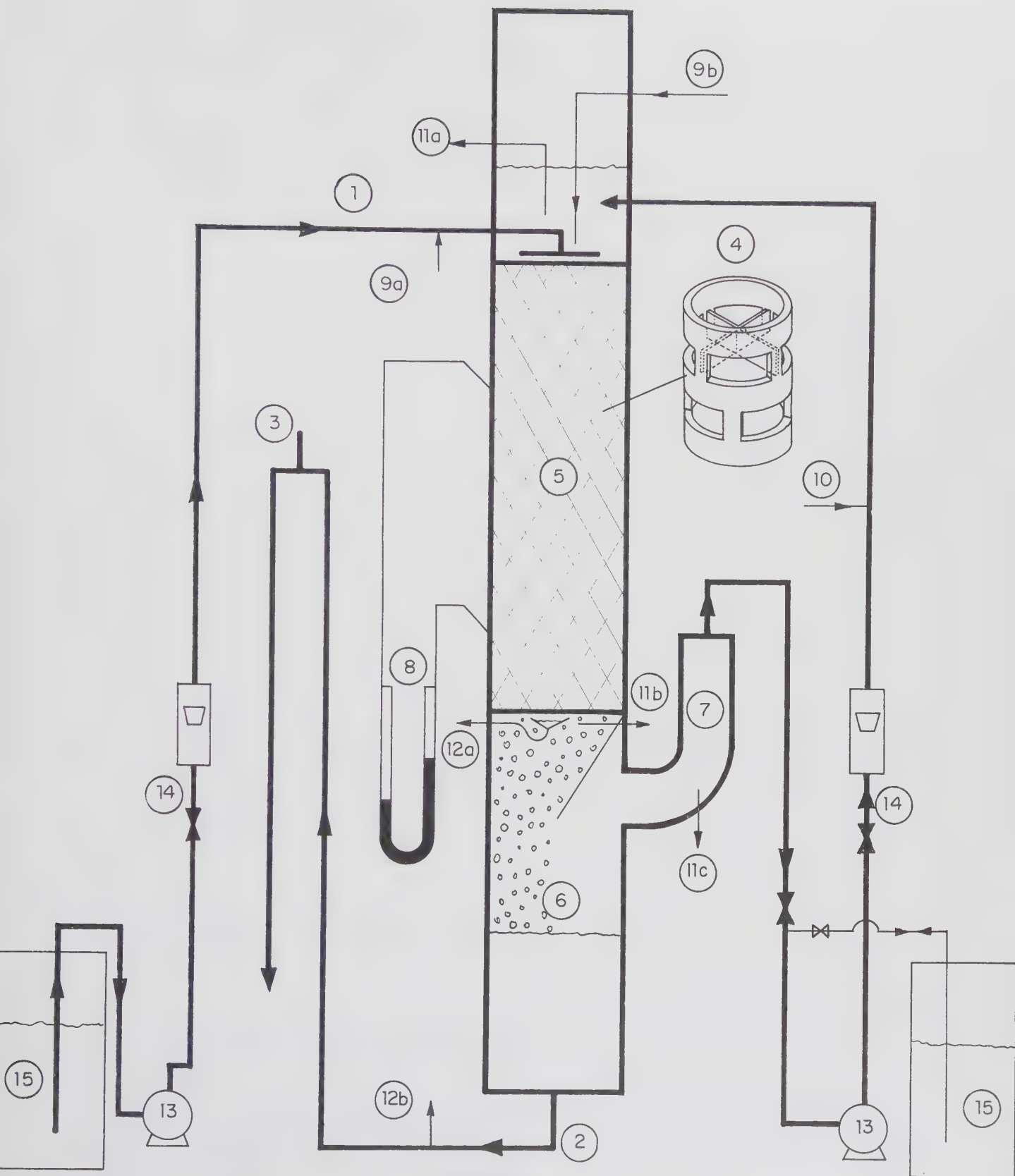
Les liquides (eau et isooctane) sont introduits en tête de colonne. La phase dispersée (eau) est en circuit ouvert, elle est introduite au moyen d'un distributeur, semblable à un plateau perforé, contenant de nombreux trous. La phase continue est recyclée.

Les deux phases sont décantées à la suite du remplissage. L'interface est positionné au moyen d'un tube à niveau (de gros diamètre pour diminuer la perte de charge), par lequel s'écoule la phase lourde (eau). La phase légère (isooctane) est aspirée latéralement.

Les entraînements de phase légère dans la sortie de phase lourde sont évités en maintenant l'interface assez haut. Les entraînements de phase lourde dans la sortie de phase légère sont limités par la présence d'un baffle semi-elliptique, placé en bas du garnissage ; de plus la bretelle de sortie de l'isooctane (7,5 cm de diamètre) empêche les remontées de gouttes d'eau.

LEGENDE DE LA FIGURE 1

- 1 - Arrivée de l'eau
- 2 - Sortie de l'eau
- 3 - Tube à niveau
- 4 - Arrivée de l'isooctane
- 5 - Garnissage - Dessin d'un anneau Pall
- 6 - Décanteur
- 7 - Bretelle de sortie de l'isooctane
- 8 - Monomètre différentiel
- 9 - Introduction de traceur pour la mesure du mélange axial
 - a) Eau avant le distributeur
 - b) Isooctane au début du garnissage
- 10 - Introduction pour l'injection en continu
- 11 - Prises d'échantillon d'isooctane
 - a) En tête de colonne
 - b) Sous le garnissage
 - c) Dans la bretelle de sortie
- 12 - Prises d'échantillon d'eau
 - a) Sous le garnissage
 - b) A la sortie du décanteur
- 13 - Pompes
- 14 - Rotamètres
- 15 - Bacs de 100 litres



- FIGURE 1 -

SCHEMA DE LA COLONNE DE 15 CM DE DIAMETRE (LEGENDE P. 24)

Les pompes centrifuges (Sihi) débitent jusqu'à $1,5 \text{ m}^3/\text{h}$ pour l'eau et jusqu'à plus de $2 \text{ m}^3/\text{h}$ pour l'isooctane, ce qui donne des vitesses (en colonne vide) de 0,22 à 2,33 cm/s pour la phase lourde et de 0,72 à 3,25 cm/s pour la phase légère. Les mesures de débits s'effectuent avec des rotamètres préalablement étalonnés (Brooks, type Full view) donnant une précision de l'ordre de 2 % ; leur régulation est obtenue par une vanne. La stabilité des flotteurs est assez bonne.

Bien que, à un instant donné, la température soit homogène dans tout l'appareil, elle varie d'une expérience à l'autre (échauffement dans les pompes variant avec les débits, température de l'eau différente, variation de la température ambiante). Sa valeur, mesurée au sein du garnissage, a été notée à chaque fois et on a tenu compte dans les calculs des variations des propriétés des fluides et du coefficient de partage avec la température. Cependant, pour une grande partie des mesures, la température était voisine de 20°C , en outre la précision expérimentale étant assez faible, cette correction a eu le plus souvent peu d'importance.

La colonne de 15 cm de diamètre nous a permis de mesurer :

- perte de charge en écoulement monophasique
- rétention et perte de pression pour des écoulements diphasiques
- distribution des temps de séjour en phase dispersée
- distribution des temps de séjour en phase continue
- efficacité du garnissage

1.2 - PROPRIETES DU GARNISSAGE ET DES FLUIDES

1.21 - Caractéristiques du garnissage

Le garnissage utilisé est constitué d'empilements en vrac d'anneaux Pall en polyéthylène de 15 x 15 mm. Les lits obtenus ont une très

grande porosité, de 0,85 à 0,87 selon l'empilement effectué.

La surface spécifique de l'élément est de $23,9 \text{ cm}^{-1}$, ce qui donne un diamètre équivalent de grain au sens d'Ergun [E 1] (diamètre de la sphère qui a la même surface spécifique que le grain).

$$D_g = 6/S_g = 0,251 \text{ cm}$$

Ce garnissage a été choisi en raison de son intérêt industriel. Etant très ouvert, il n'introduit qu'une faible perte de charge et doit conduire à une bonne division des phases. Il existe industriellement en divers matériaux à la taille utilisée et au-dessus et sert en particulier dans les colonnes à distiller sous-vide.

1.22 - Propriétés des fluides

Les propriétés physiques des fluides (masse volumique et viscosité) sont données dans le Tableau I. Nous avons pris les chiffres soit donnés par le fabricant ou dans la littérature, soit mesurés par les méthodes classiques (décaline en particulier pour laquelle nous avons un mélange cis-trans).

Pour la colonne de grand diamètre, nous avons toujours utilisé l'eau et l'isooctane (2,2,4 triméthylpentane) comme fluides immiscibles, pour les colonnes plus petites, nous avons utilisé en plus l'heptane, la décaline et l'éthylène glycol. La méthyl-éthyl-cétone (MEK) a été utilisée comme traceur pour le transfert de matière, la méthyl-isobutyl-cétone (MIBK) comme traceur pour obtenir la distribution des temps de séjour de la phase continue.

- TABLEAU I -
PROPRIETES DES FLUIDES

Liquide	Masse volumique g/cm ³			Viscosité cPo		
	15	20	25	15	20	25
Température °C						
Eau.....	0,9991	0,9982	0,9971	1,140	1,005	0,894
Heptane.....	0,688	0,684	0,679	0,434	0,409	0,386
Isooctane.....	0,696	0,692	0,688	0,543	0,903	0,473
Ethylène glycol.....	1,117	1,114	1,110	26,1	21,0	17,0
Décaline (mélange cis-trans).....	0,895	0,891	0,888	3,16	2,84	2,54
Méthyl-éthyl-cétone.....	0,810	0,805	0,800	0,450	0,430	0,410
Méthyl-isobutyl-cétone.....	0,805	0,800	0,795	0,64	0,60	0,58

1.3 - PHENOMENE OBSERVE

L'observation de l'écoulement dans notre type de colonne a été surtout effectuée sur les colonnes de petits diamètres [R 5]. Pour la colonne de taille plus importante, on ne voit que ce qui se passe au voisinage des parois.

Pour les deux types de colonne, pour un sens d'écoulement donné, la phase dispersée est toujours la même : phase lourde en courant descendant, phase légère en courant ascendant. Il n'y a donc qu'un type d'écoulement pour la gamme des débits étudiée contrairement à ce qui se passe en écoulement co-courant gaz-liquide pour lequel Charpentier [C 3] a distingué quatre types d'écoulements.

La phase dispersée, l'eau le plus souvent, s'écoule sous forme de gouttes de taille à peu près uniforme s'arrêtant de temps en temps sur un élément de garnissage pour repartir après un temps d'arrêt variable. D'autre part, il existe au sein du garnissage des endroits remplis en permanence de phase dispersée constamment renouvelée par d'autres gouttes qui en arrivant chassent la précédente. La vitesse des gouttes, observée à l'oeil nu, paraît assez uniforme pour un écoulement donné.

Ces constatations ont déjà été effectuées par Vigliecca [V 4] et par Vignes [V 5] pour des écoulements liquide-liquide à contre-courant.

Dans la colonne de 15 cm ce phénomène est peu visible et, au voisinage des parois, on observe, en plus des gouttes, des filets de phase dispersée plus ou moins interconnectés.

Dans toutes les colonnes utilisées on observe, dans la zone d'introduction, que l'écoulement devient uniforme au bout d'une longueur de lit inférieure au diamètre de la colonne.

- CHAPITRE II -

RETENTIONS ET PERTES DE CHARGE

- P L A N -

<u>INTRODUCTION.....</u>	34
 <u>2.1 - PERTE DE CHARGE EN ECOULEMENT MONOPHASIQUE.....</u>	35
2.11 - <u>Techniques de mesures.....</u>	35
2.12 - <u>Modèle d'Ergun.....</u>	35
a) - <u>Définitions.....</u>	36
b) - <u>Equation d'Ergun.....</u>	39
2.13 - <u>Résultats.....</u>	40
a) - <u>Colonnes de 5 cm de diamètre.....</u>	42
b) - <u>Colonne de 15 cm de diamètre.....</u>	42
 <u>2.2 - RETENTION ET PERTE DE PRESSION EN ECOULEMENT DIPHASIQUE.....</u>	45
2.21 - <u>Techniques de mesures.....</u>	45
a) - <u>Différence de pression en écoulement diphasique.....</u>	45
b) - <u>Rétentions.....</u>	46
2.22 - <u>Résultats expérimentaux.....</u>	48
2.23 - <u>Hydrodynamique du système.....</u>	48
a) - <u>Introduction.....</u>	48
b) - <u>Corrélations semi-empiriques.....</u>	58
c) - <u>Modèles.....</u>	59

2.24 - <u>Modèle du pore stratifié</u>	62
a) - <u>Hypothèses</u>	62
b) - <u>Exposé du modèle</u>	68
c) - <u>Résultats</u>	72
d) - <u>Conclusion</u>	89
2.25 - <u>Rétention dynamique obtenue à partir des mesures de différence de pression</u>	95
<u>CONCLUSION</u>	99

I N T R O D U C T I O N

Il est nécessaire de connaître les variations de pression entre l'entrée et la sortie d'un garnissage pour l'équilibrage hydrodynamique d'un appareil industriel. Cette variation de pression est composée d'une perte de charge frictionnelle et d'une charge statique qui dépend de la rétention de phase dispersée (fraction volumique de phase dispersée dans un garnissage à un instant donné).

La rétention conditionne également l'aire interfaciale et par conséquent, l'efficacité du transfert entre phases. Cette rétention comprend un terme dynamique (fraction en écoulement à un instant donné) et un terme stationnaire (fraction à l'arrêt à un instant donné).

2.1 - PERTE DE CHARGE EN ECOULEMENT MONOPHASIQUE

2.11 - Techniques de mesures

Les mesures sont faites au moyen de manomètres différentiels dans lesquels le liquide léger est celui s'écoulant dans la colonne. Le liquide lourd a une densité convenable ($0,1$ à $0,3 \text{ g/cm}^3$ de plus que le liquide léger) pour que la dénivellation manométrique soit assez importante et assez stable.

Pour éviter les phénomènes de capillarité à l'interface, les branches des manomètres sont de forts diamètres (4 ou 5 cm). Les mesures sont faites par visée au cathétomètre, chaque mesure étant précédée de plusieurs visées pour attendre l'équilibre. Selon les deux liquides, le temps de réponse des manomètres varie entre $1/2 \text{ h}$ et 1 h .

En écoulement monophasique, la dénivellation manométrique donne la perte de charge frictionnelle. En effet (Figure 2 a) :

$$\text{dans la colonne} \quad P_2 = P_1 + g L \rho_1 - \Delta P \quad (\text{II-1})$$

$$\text{pour le manomètre} \quad P_2 + g h_1 \rho_1 + (h + h_2) g \rho_2 = P_1 + g (L + h_1 + h) \rho_1 + g h_2 \rho_2 \quad (\text{II-2})$$

$$\text{il vient} \quad \Delta P = g h \Delta \rho \quad (\text{II-3})$$

2.12 - Modèle d'Ergun

La perte de charge en écoulement monophasique est fonction du débit du liquide. La relation la plus généralement utilisée est celle d'Ergun [E 1].

Pour un milieu poreux, la mise en équation d'un problème de transfert de quantité de mouvement entre les phases, exige que l'on sache décrire la texture du milieu à l'aide d'un nombre restreint de paramètres.

Le système réel étant trop compliqué, on le représente par un modèle simplifié ayant une certaine régularité de texture et pouvant être décrit par deux ou trois paramètres.

Deux familles de modèles ont été proposées :

- ou bien on assimile le milieu poreux à un ensemble de sphères. C'est le modèle utilisé par Sweeney [S 7] .
- ou bien on considère un modèle de pore, c'est-à-dire que l'on représente le milieu poreux par un ensemble de cylindres interconnectés, de dimensions variées, par lesquels s'écoulent les phases.

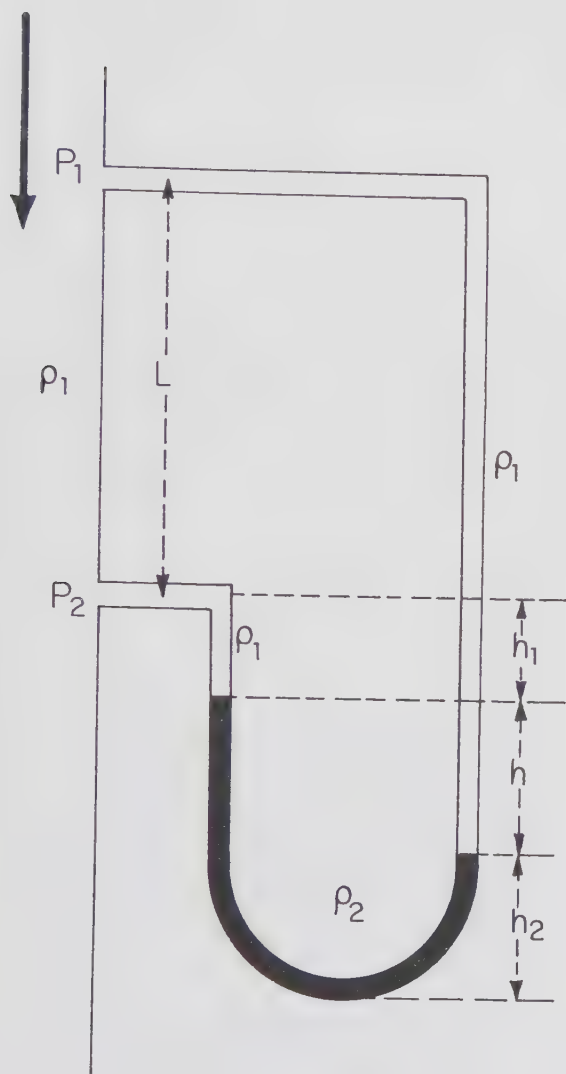
a) - Définitions

Les caractéristiques d'un remplissage sont généralement :

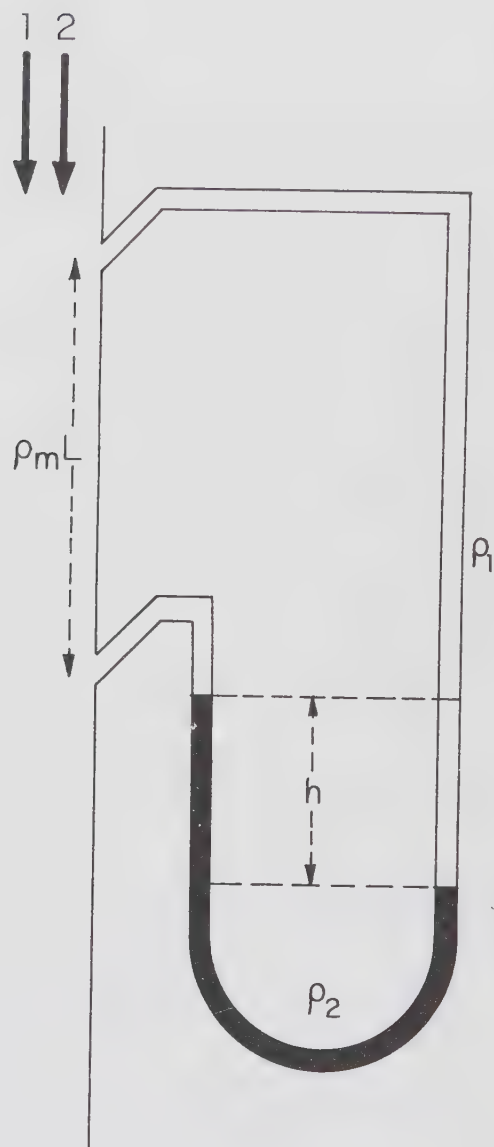
- ϵ porosité ou portion de volume non occupée par le garnissage
- S_L surface spécifique du lit (aire de contact solide-fluide divisée par le volume du lit)
- S_g surface spécifique de l'élément = $\frac{S_L}{(1 - \epsilon)}$
- D_P diamètre "équivalent" ou diamètre hydraulique du pore

$$D_P = 4 \times \frac{\text{section de passage}}{\text{périmètre mouillé}}$$

$$D_P = \frac{4 \epsilon}{S_g (1 - \epsilon)} \quad (\text{II-4})$$



- FIGURE 2 a -
PERTE DE CHARGE
ÉCOULEMENT MONOPHASIQUE



- FIGURE 2 b -
DIFFERENCE DE PRESSION
ÉCOULEMENT DIPHASIQUE

- D_g diamètre équivalent de l'élément, c'est-à-dire le diamètre de la sphère qui a la même surface spécifique que l'élément :

$$D_g = \frac{6}{S_g} \text{ et donc } D_p = \frac{2}{3} D_g \frac{\epsilon}{1 - \epsilon} \quad (\text{II-5})$$

Seulement deux de ces paramètres sont indépendants. La porosité et le diamètre équivalent de l'élément suffisent donc à caractériser un remplissage.

On peut également définir d'autres grandeurs comme d_e qui est le diamètre équivalent au sens de Carman [C 2] défini comme étant le diamètre de la sphère qui a le même volume que la particule de garnissage. Certains auteurs définissent également la sphéricité d'un élément ψ qui est le rapport de la surface de la sphère de même volume que l'élément à la surface d'un élément.

b) - Equation d'Ergun

Pour une colonne à garnissage, on observe expérimentalement :

- qu'à bas régime ($Re' < 10$) la viscosité est prépondérante et la perte de charge est de la forme : $\Delta P = a \mu u$
- qu'à vitesse plus élevée ($Re' > 100$) la perte de charge est proportionnelle au carré de la vitesse $\Delta P = b \rho u^2$
- qu'il n'y a pas de discontinuité entre les deux régimes

Ergun [E 1] reprenant les travaux de Carman [C 2] et de Burke et Plummer [B 4] a proposé une équation vérifiant ces constatations :

$$\frac{\Delta P}{L} = K_1 \mu \frac{U_o}{D_g} \frac{(1 - \epsilon)^2}{\epsilon^3} + K_2 \rho \frac{U_o^2}{D_g} \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \quad (\text{II-6})$$

où ΔP est la perte de charge frictionnelle pour une longueur L de colonne,
 U_o la vitesse rapportée à la colonne vide et K_1 et K_2 des coefficients
 qu'Ergun a trouvé égaux à :

$$K_1 = 150 \qquad K_2 = 1,75$$

pour des garnissages de sphères et de cylindres de porosité assez faible.

Nous avons utilisé deux formes sans dimension de cette équation, où
 Re' est le nombre de Reynolds corrigé

$$Re' = \frac{D_g \rho U_o}{\mu (1 - \epsilon)}$$

$$J = \frac{\Delta P}{L} \frac{\rho D_g^3}{\mu^2} \left(\frac{\epsilon}{1 - \epsilon} \right)^3 = Re' (K_1 + K_2 Re')$$

$$Ju = \frac{J}{Re'} = \frac{\Delta P}{L} \frac{D_g^2 \epsilon^3}{\mu (1 - \epsilon)^2} \times \frac{1}{U_o} = K_1 + K_2 Re' \quad (II-7)$$

2.13 - Résultats

Il était intéressant de savoir si l'équation d'Ergun obtenue pour
 des garnissages de faibles porosités ($< 0,6$) correspondait aux résultats que
 l'on obtient avec des lits constitués d'anneaux Pall.

De nombreux auteurs [C 3, G 5, L 1, R 1, R 6] ont déjà indiqué que
 l'équation d'Ergun représente bien les résultats de perte de pression à
 condition de mesurer pour chaque lit les coefficients K_1 et K_2 . On trouvera
 dans le Tableau II les différentes valeurs trouvées par ces auteurs.

Il convient de remarquer que la plupart de ces auteurs ne vérifient
 pas l'équation d'Ergun mais seulement une équation de la forme :

Auteurs	Garnissage			Diamètre de la colonne cm	Coefficients de l'équation d'Ergun	
	Type	Dimension cm	Porosité		K_1	K_2
Larkins et coll. [L 2]	Cylindres Sphères a.R.	0,318	0,357	5,08 et 10,16	150	1,75
		0,953	0,362		118	1,00
		0,953	0,520		266	2,33
Rigg et Churchill [R 6]	Sphères Sphères Sphères Sphères	1,27	0,400	10,16	315	1,16
		0,864	0,383		254	1,52
		0,864	0,382		349	1,19
		0,417	0,337		210	1,28
Reiss L.P. [R 1]	a.R. en vrac	1,270	0,783	7,62 7,62 40,7 10,16 et 40,7 40,7 40,7	110	2,04
	a.R. rangés	1,270	0,726		84	0,234
	a.R. en vrac	2,54	0,883		920	5,51
	a.R. rangés	2,54	0,787		129	0,117
	a.R. rangés	7,62	0,787		122	0,108
	Selles Intalox	2,54	0,782		135	2,00
Charpentier [C 3]	a.R.	0,64	0,70	10 10 10 20 x 20 section carrée	306	3,05
	a.R.	1,03	0,67		407	3,33
	a.R. siliconés	1,03	0,69		576	2,89
	a.R.	2,20	0,73		1436	5,23
Grange et coll. [G 5]	a.P. "Plastic"	1,5	0,845	5 5 5	200	2,0
	a.P. "Metallic"	1,5	0,940		150	1,4
	a.R.	1,1 x 1,1 x 1,5	0,740		163	3,1

a.R. = anneaux Raschig

a.P. = anneaux Pall

$$\frac{\Delta P}{L} = A \mu U_o + B \mu U_o^2 \quad (II-8)$$

C'est une relation de cette forme que nous avons appliquée à notre cas, en calculant néanmoins des valeurs de K_1 et de K_2 , afin de permettre une comparaison plus facile avec les résultats des autres auteurs.

a) - Colonnes de 5 cm de diamètre

En mesurant les coefficients pour chaque garnissage, on vérifie que l'équation (II-8) représente bien les résultats expérimentaux, même pour les garnissages très poreux que nous utilisons (Figure 3). Par contre, nous avons trouvé des résultats légèrement différents selon les liquides. Les liquides hydrophiles (eau, glycol) donnent des pertes de charge plus faibles que les liquides organiques (heptane, décaline). Aucune explication n'ayant été trouvée pour ce phénomène, si ce n'est la précision expérimentale, nous avons pris pour les colonnes de 5 cm de diamètre les valeurs moyennes identiques à celles obtenues par Grange et coll [G 5].

$$K_1 = 200 \quad K_2 = 2$$

b) - Colonne de 15 cm de diamètre

Dans cet appareil, une première série de mesures effectuées avec de l'eau puis de l'isooctane a donné comme valeurs moyennes :

$$K_1 = 360 \quad K_2 = 2,6$$

Après plusieurs mois d'utilisation, le garnissage s'étant sali et les grains ayant pris chacun leur position de tassement maximum, une autre série de mesures avec chacun des deux fluides a donné comme résultats :

$$K_1 = 400 \quad K_2 = 4$$

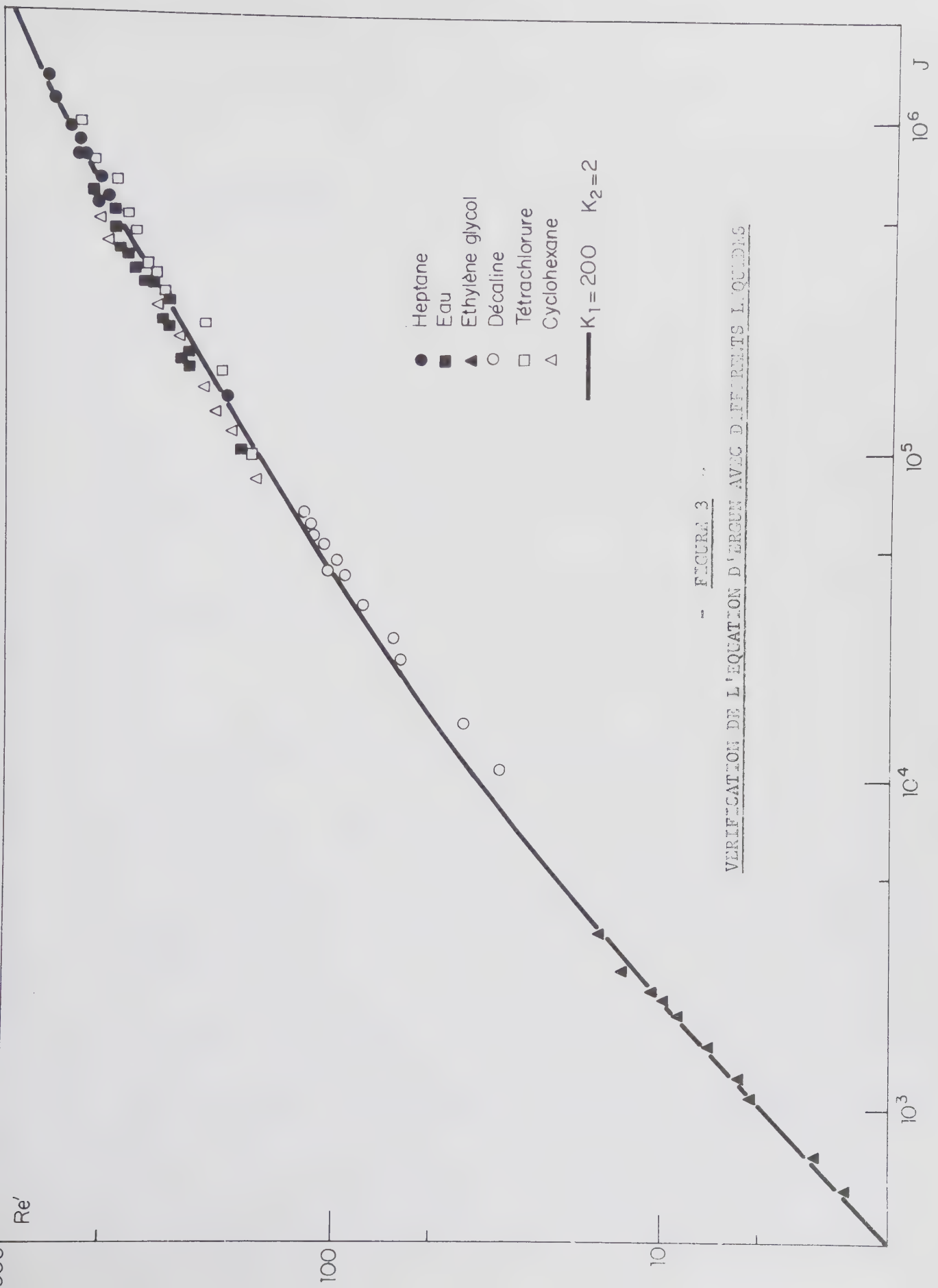


FIGURE 3
 VERIFICATION DE L'EQUATION D'ERGUN AVEC DIFFERENTS LIQUIDES

Nous avons continué à mesurer ces coefficients et ils n'ont plus varié.

2.2 - RETENTION ET PERTE DE PRESSION EN ECOULEMENT DIPHASIQUE

2.21 - Techniques de mesures

a) - Différence de pression en écoulement diphasique

La technique est la même que pour la mesure en écoulement monophasique à ceci près que les prises de pression sont à 45° par rapport à la paroi de la colonne pour éviter les remontées de phase lourde. Les liquides sont les mêmes que ceux s'écoulant dans la colonne.

Le calcul de la différence de pression totale sur la longueur L s'effectue en écrivant pour le manomètre (Figure 2 b).

$$g h \rho_2 + P_2 = g h \rho_1 + g L \rho_1 + P_1 \quad (\text{II-9})$$

$$P_2 - P_1 = \Delta P_T = g L \rho_1 - g h \Delta \rho \text{ avec } \Delta \rho = \rho_2 - \rho_1 \quad (\text{II-10})$$

$$\text{Soit } \frac{\Delta P_T}{L} = g \rho_1 - g \frac{h}{L} \Delta \rho \quad (\text{II-11})$$

On définit la perte de charge frictionnelle d'un écoulement diphasique comme étant la différence entre la perte de pression totale et la charge statique $g \rho_m$.

$$\text{D'où } \frac{\Delta P_F}{L} = g \rho_m - \frac{\Delta P_T}{L} \quad (\text{II-12})$$

ou ρ_m est la masse volumique moyenne des fluides, fonction de la rétention.

Nous reviendrons sur cette définition de la perte de charge frictionnelle diphasique au paragraphe 2.23.

b) - Rétentions

Les mesures de rétention ne sont pas aisées particulièrement pour les écoulements liquide-liquide pour deux raisons principales :

- c'est un phénomène dynamique dont la mesure dans certains cas exige l'arrêt simultané et très rapide des écoulements
- c'est un phénomène fluctuant autour d'une valeur moyenne parfois longue à obtenir et demandant une grande stabilité des débits

Les méthodes étudiées sont les suivantes :

- la pesée en continu de la colonne utilisée par Gelbe [G 3] pour un écoulement gaz-liquide sur un petit appareil. Pour notre matériel, cette méthode n'est pas applicable à cause du très grand poids de l'ensemble et de la faible différence de densité en écoulement liquide-liquide.
- l'arrêt simultané et rapide des écoulements utilisé par Charpentier [C 3] et Larkins [L 1] pour les écoulements gaz-liquide et par Rigg [R 6] et Grange [G 5] pour les écoulements liquide-liquide. Cette méthode n'est applicable qu'aux colonnes de faible taille et si le décanteur n'est pas situé directement sous le garnissage. Nous avons utilisé cette méthode pour une colonne de 5 cm de diamètre. En laissant décanter les phases dans la colonne, la méthode est assez imprécise à cause de l'existence de la rétention stationnaire et nous avons préféré vider totalement la colonne.
- la méthode par déplacement a été utilisée pour les colonnes où le décanteur est à la suite du garnissage. Un volume constant de phase légère, entre l'interface isooctane-eau du décanteur et l'interface isooctane-air du

sommet de la colonne (cf. Figure 1), s'écoule dans l'appareil. L'augmentation apparente de ce volume quand l'eau s'écoule dans le garnissage provient de la quantité de phase dispersée contenue dans l'appareil. La mesure se fait en notant pour l'écoulement d'isooctane seul, puis pour l'écoulement diphasique, les positions des deux interfaces. L'imprécision de cette méthode provient, d'une part des remous provoqués par la décantation de l'eau qui empêche de connaître précisément la position de l'interface dans le décanteur, et, d'autre part du volume d'eau dispersée dans le décanteur.

- enfin, la méthode que nous avons la plus utilisée, est le calcul de la rétention à partir du temps de séjour moyen, et de la variance du pic de sortie d'une impulsion de traceur. Cette impulsion pouvant être faite dans l'une ou l'autre phase, on peut avoir deux mesures. Cette méthode utilisée par de nombreux auteurs [C 4, H 4, H 5, L 7, L 8, S 2, V 1, V 6] est décrite par Levenspiel et coll [L 7, L 8]. Les techniques de mesures étant les mêmes que pour le mélange axial, nous les expliquerons au chapitre III ou nous verrons également les problèmes d'introductions et d'échantillonnages des traceurs, et de détections du pic de sortie.

Le modèle que nous choisirons pour la distribution des temps de séjour (cf. 3.3) donne pour la rétention totale en phase dispersée :

$$x_T = \frac{\bar{t}_{OC}}{\varepsilon L} \quad (II-13)$$

où $\bar{t}$ est le temps de séjour moyen du traceur.

La phase continue sera assimilée à un réacteur ouvert-ouvert et nous aurons (cf. 3.12 a)

$$(1 - x_T) = \frac{\bar{t} U_{OC}}{\varepsilon L} \frac{Pe_c}{2 + Pe_c} \quad \text{où} \quad Pe_c = \frac{U_c L}{E_c} \quad (II-14)$$

2.22 - Résultats expérimentaux

On a porté sur les Figures 4 à 7 les principaux résultats hydrodynamiques obtenus sur la colonne de 15 cm de diamètre. La Figure 4 donne les variations de la rétention totale en fonction des débits de chaque phase. Les points portés sur cette courbe sont des valeurs moyennes obtenues pour chaque couple de débits. Ces moyennes ont été calculées en utilisant les chiffres obtenus par déplacement et par le temps de séjour moyen dans chaque phase.

On peut en effet voir sur la Figure 5 que les résultats fluctuent d'une mesure à l'autre et d'une méthode à l'autre. Ces résultats montrent également que la prise d'échantillon de phase dispersée est bien représentative de l'ensemble de l'écoulement (cf. 3.21).

Ces résultats et ceux obtenus avec des colonnes plus petites montrent que la rétention est avant tout une fonction croissante du débit de phase dispersée et également, mais dans une plus faible mesure, une fonction décroissante de la vitesse de la phase continue.

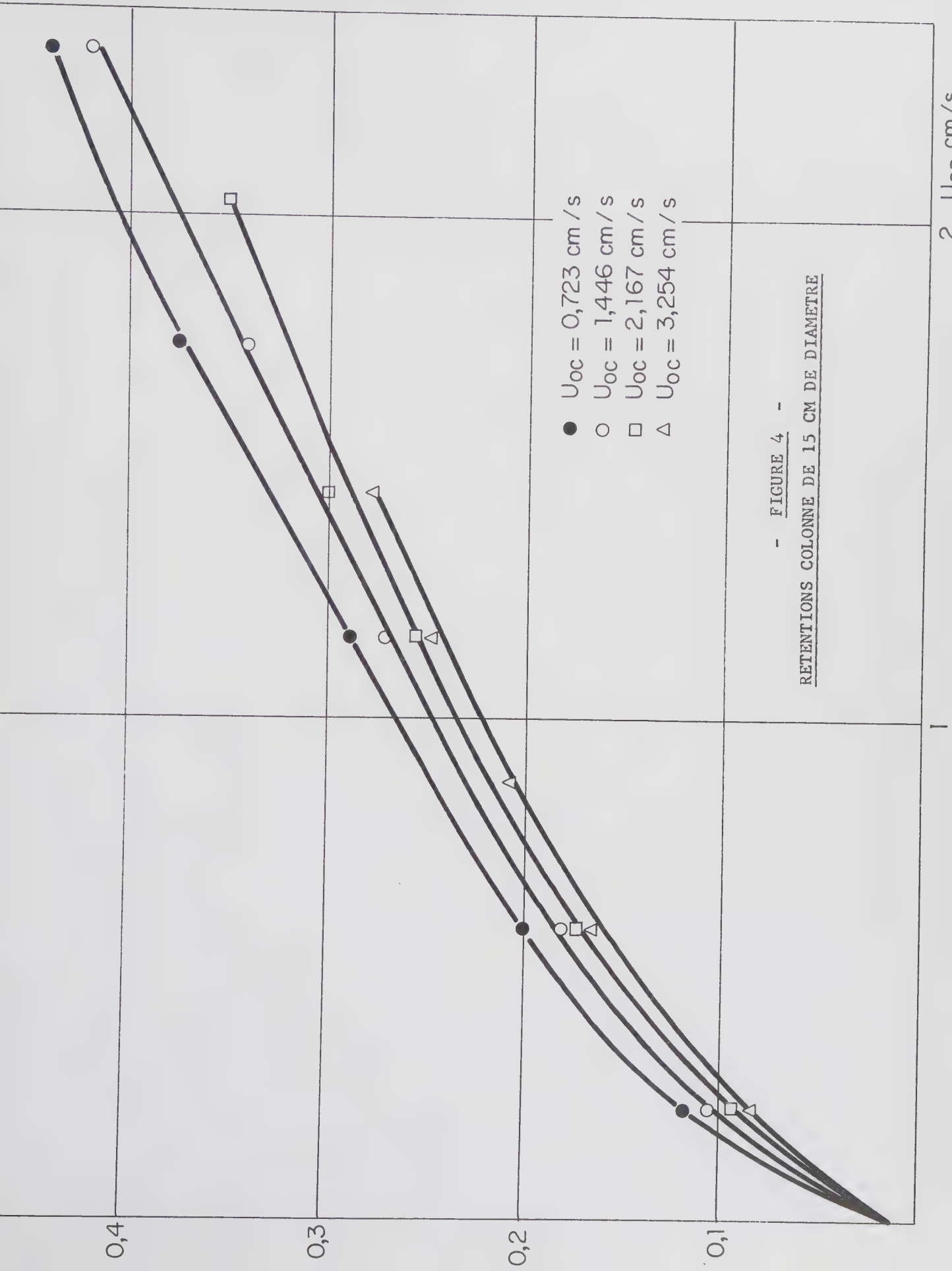
La Figure 6 compare les résultats de rétention totale obtenus à partir du temps de séjour moyen, soit de la phase dispersée, soit de la phase continue. Bien que la précision soit faible, les résultats se recourent.

La Figure 7 donne les variations de la chute de pression totale avec les débits de chaque phase.

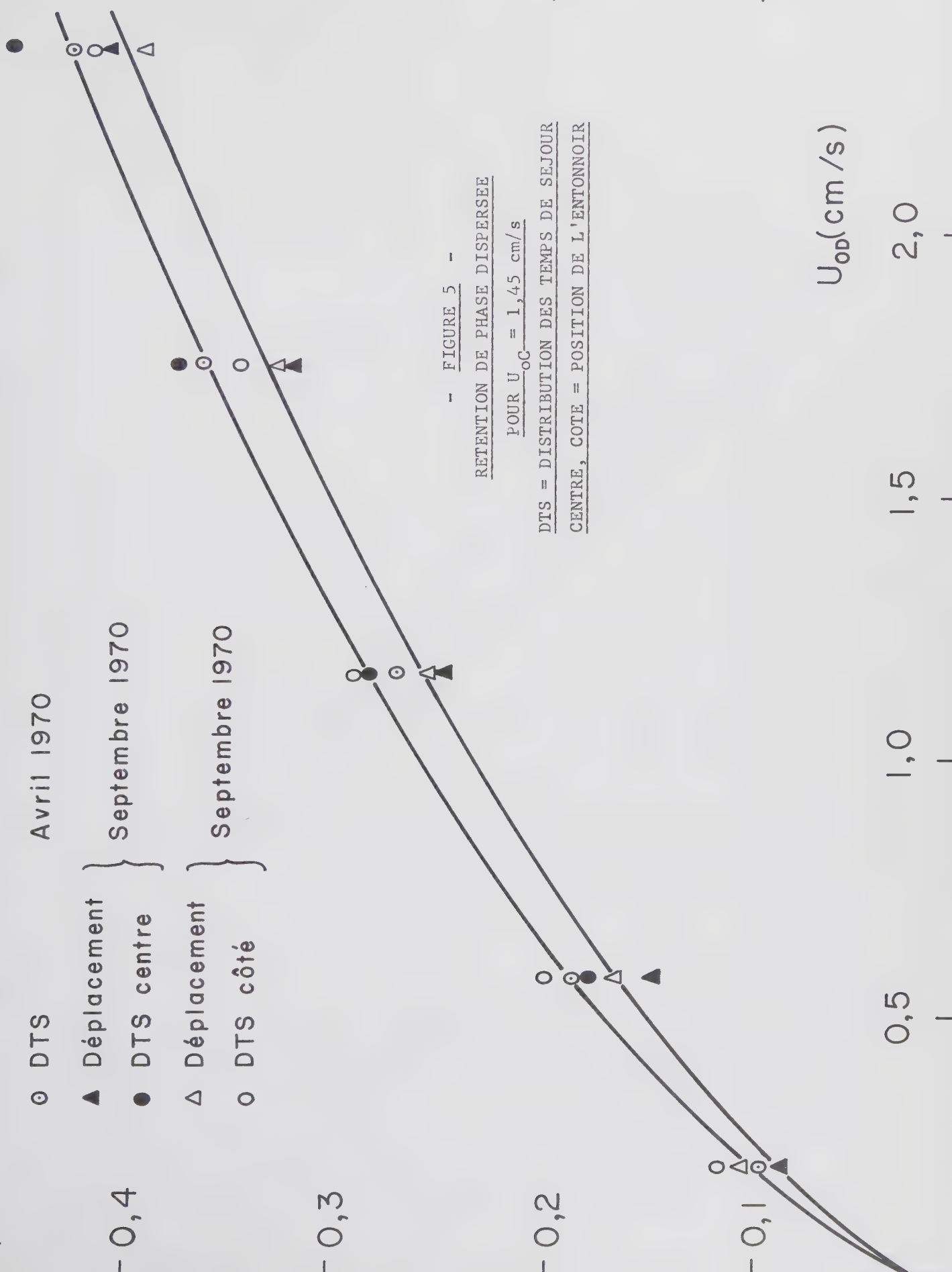
2.23 - Hydrodynamique du système

a) - Introduction

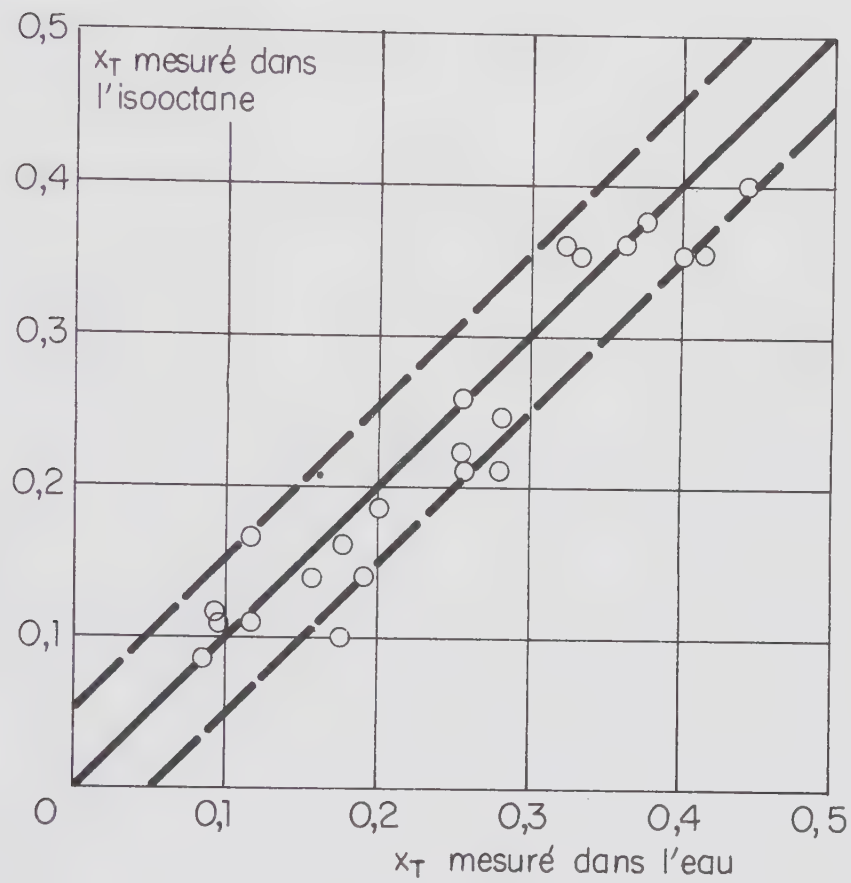
Le phénomène observé (cf. 1.3) nous amène à caractériser la structure de l'écoulement de phase dispersée en définissant trois sortes de rétention.



○ DTS Avril 1970
 ▲ Déplacement }
 }
 ● DTS centre } Septembre 1970
 ▲ Déplacement }
 }
 ○ DTS côté } Septembre 1970

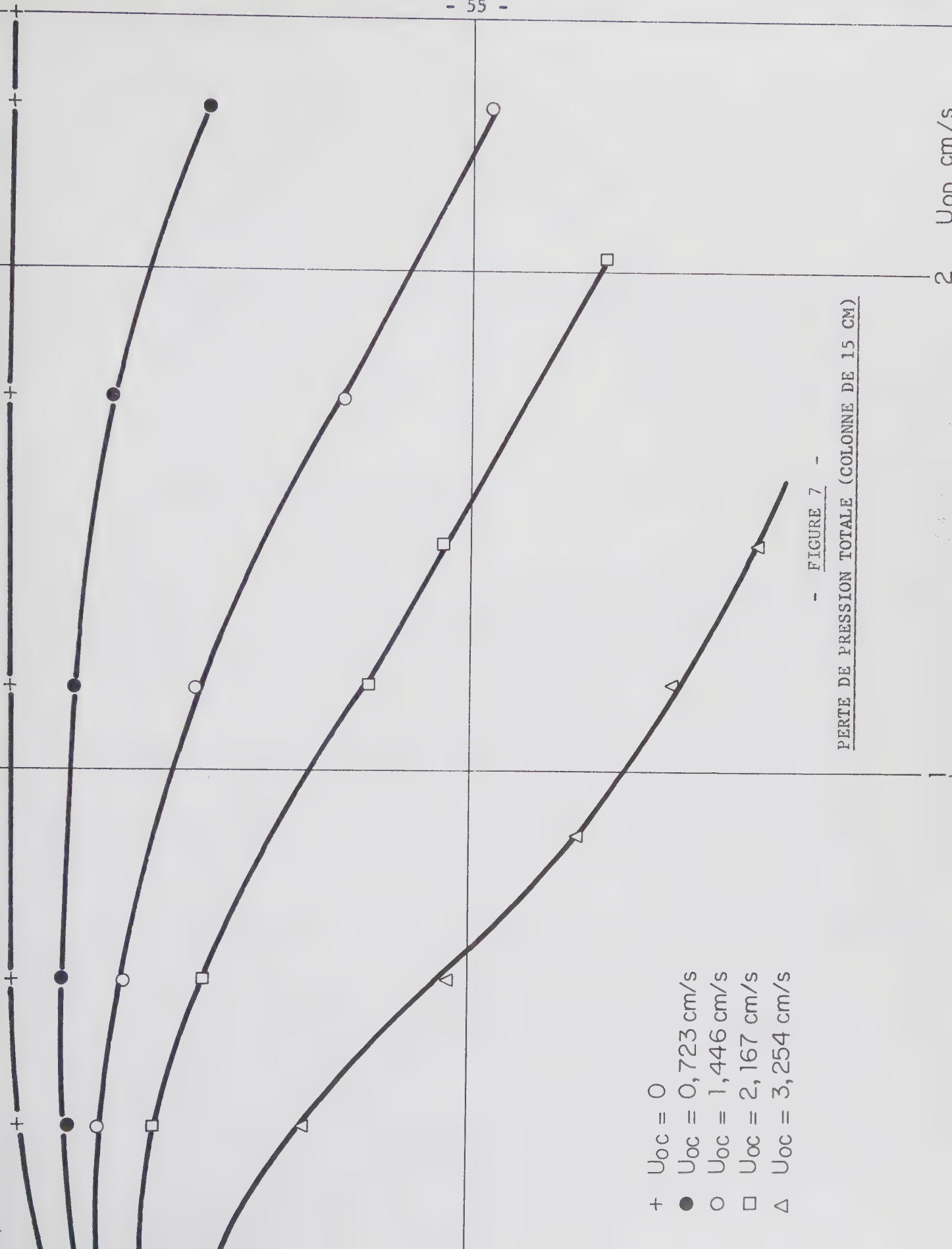


- FIGURE 5 -
 RETENTION DE PHASE DISPERSEE
 POUR $U_{OC} = 1,45 \text{ cm/s}$
 DTS = DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR
 CENTRE, COTE = POSITION DE L'ENTONNOIR



- FIGURE 6 -

COMPARAISON DES MESURES DE TEMPS DE SEJOUR MOYEN DANS CHAQUE PHASE



- FIGURE 7 -
PERTE DE PRESSION TOTALE (COLONNE DE 15 CM)

- + $U_{0c} = 0$
- $U_{0c} = 0,723$ cm/s
- $U_{0c} = 1,446$ cm/s
- $U_{0c} = 2,167$ cm/s
- △ $U_{0c} = 3,254$ cm/s



- Rétention capillaire (x_C). Elle est constituée des fractions de phase dispersée insérées entre les éléments de garnissage et qui ne participent pas à l'écoulement ; son importance est faible (de l'ordre de 1 %). C'est à peu près la quantité d'eau qui reste sur le garnissage si on vide totalement la colonne.
- Rétention stationnaire (x_S). Elle est composée de toutes les gouttes à l'arrêt à un instant donné et des quantités de phase dispersée dans les poches stagnantes. Ces fractions de phase dispersée étant constamment renouvelées, cette rétention participe à l'écoulement. Son importance varie avec les débits et elle peut représenter un volume important.
- Rétention dynamique (x_D). Ce sont toutes les fractions de phase dispersée en mouvement à un instant donné.

La somme des trois donne la rétention totale (x_T). Les mesures que nous avons effectuées, en particulier par la méthode des temps de séjour, permettent de déterminer la somme ($x_S + x_D$). En effet la rétention capillaire ne participe à l'écoulement et n'influence pas le temps de séjour moyen.

Pour prédire la différence de pression et la rétention, il est possible de suivre deux méthodes :

- ou bien relier ces variables à des nombres sans dimension $[B\ 1, L\ 1, L\ 2, C\ 3, C\ 4, R\ 1, T\ 1, W\ 1]$.
- ou bien établir des modèles hydrodynamiques qui représentent le phénomène observé $[G\ 1, G\ 2, G\ 5, S\ 7]$.

La différence de pression pour un écoulement diphasique dans un garnissage se compose d'un terme de frottement et d'un terme dus à la rétention :

$$\Delta P_T = \Delta P_F + g \rho_m \quad (II-15)$$

Dans cette équation le terme ρ_m , densité moyenne, fait intervenir la rétention dynamique :

$$\rho_m = x_D \rho_1 + (1 - x_D) \rho_2 \quad (\text{II-16})$$

en effet, le reste de la phase dispersée, reposant sur le garnissage ne participe à l'équilibre des pressions qu'en restreignant le passage des phases en mouvement. La plupart des auteurs n'ont pas fait cette distinction et ont calculé la densité moyenne à partir de la rétention non capillaire.

b) - Corrélations semi-empiriques

Larkins et coll. [L 2] ont mis au point une relation semi-empirique donnant la perte de charge frictionnelle et la rétention pour des écoulements à co-courant gaz-liquide dans les garnissages. Ces deux grandeurs sont corrélées en fonction d'une seule variable, déjà introduite par Lockart et Martinelli [L 9] pour les écoulements diphasiques dans les tuyaux vides :

$$\chi = \sqrt{\frac{\Delta P_{FL}}{\Delta P_{FG}}} \quad (\text{II-17})$$

où ΔP_{FL} et ΔP_{FG} sont les pertes de charge frictionnelles de chaque phase en écoulement monophasique.

Charpentier a montré [C 3] que la représentation de Larkins était basée sur le modèle du fluide équivalent et qu'elle fait appel à un bilan de force. Tout en conservant la forme générale de la corrélation de Larkins, il a montré qu'il fallait faire un bilan d'énergie. Les relations semi-empiriques qu'il obtient représentent bien, tant pour les colonnes noyées que pour les colonnes arrosées, ses résultats de perte de charge [C 4] et de rétention non capillaire [B 1].

Ce genre de corrélation est difficilement applicable au co-courant liquide-liquide. En effet le calcul de la perte de charge frictionnelle à partir de la perte de pression totale et de la rétention (eq. II-12) est très imprécis pour deux raisons :

- la perte de charge frictionnelle est faible en comparaison de la perte de pression totale (rarement plus de 10 %), contrairement aux écoulements gaz-liquide.
- la densité moyenne servant au calcul de la charge statique $g \int_m$ est difficile à déterminer précisément, à cause de la présence de la rétention stationnaire qui n'est pas directement mesurable et qui est plus importante que pour l'écoulement gaz-liquide [C 3, V 1, V 6].

c) - Modèles

Suivant la nature de l'écoulement, on caractérise l'écoulement par un modèle de gouttes, de films ou de filets.

Dans le cas d'un modèle de gouttes, on fait le bilan des forces s'exerçant sur une goutte. Dans le cas d'un modèle de films ou de filets, l'hypothèse la plus simple consiste à supposer l'équilibre des pressions sur une section droite (hypothèse de Lockart-Martinelli [L 9]).

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_T = \left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_1} + g \int_1 \quad (II-18)$$

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_T = \left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_2} + g \int_2 \quad (II-19)$$

En multipliant les relations (II-18) et (II-19) respectivement par x_1 et par x_2 et en sommant, on obtient :

$$\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_T = x_1 \left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{F_1} + x_2 \left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{F_2} + g \rho_m \quad (II-20)$$

Le calcul de $\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{F_1}$ et $\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{F_2}$ se fera en choisissant un modèle d'écoulement.

• Modèle de gouttes

En faisant le bilan des forces qui s'exercent sur une goutte, on détermine la vitesse de chute des gouttes. Pratt et coll. [G 1, G 2] déterminent la rétention dynamique en écrivant que cette vitesse est la vitesse relative des phases :

$$\frac{U_{oD}}{\varepsilon x_D} + \frac{U_{oC}}{\varepsilon(1 - x_D)} = V_o (1 - x_D) \quad (II-21)$$

V_o est la vitesse caractéristique de déplacement d'une goutte se déplaçant seule dans la phase continue. Elle est fonction des propriétés physiques des liquides et du type de garnissage.

Vignes [V 5] applique cette équation à un certain nombre de systèmes et indique les différentes équations proposées pour V_o .

Si on porte pour nos résultats la vitesse relative calculée pour le co-courant en fonction de la rétention dynamique, la dispersion des points est très grande.

• Modèle de films

Sweeney [S 7] a appliqué l'équation (II-20) en assimilant le garnissage à un ensemble de sphères uniformément recouvertes d'un film de phase liquide. La perte de charge frictionnelle du liquide étant calculée

par l'équation d'Ergun (II-6) où la vitesse et le diamètre équivalent du garnissage D_g sont corrigés pour tenir compte de la présence de l'autre phase :

$$U_L = \frac{U_{oL}}{x_L \epsilon} \text{ et } D_{gL} = D_g x_L \quad (\text{II-22})$$

La perte de charge frictionnelle de la phase gazeuse est calculée à partir de la vitesse relative des deux phases par l'équation d'Ergun, et pour le volume laissé libre par la phase liquide :

$$U_G = \frac{U_{oG}}{x_G \epsilon} = \frac{U_{oL}}{x_L \epsilon} \text{ et } D_{gG} = \frac{D_g x_G}{Z^2} \quad (\text{II-23})$$

$$\text{avec } x_L + x_G = 1 \text{ et } Z^2 = \left(1 + \frac{x_L \epsilon}{1 - \epsilon}\right)^{1/3}$$

En reportant ces résultats dans l'équation (II-20), on obtient une relation n'ayant, pour des débits donnés, que x_L ou x_G comme inconnue. On peut donc déterminer la rétention en liquide, puis calculer le gradient total de pression. Sweeney a établi son modèle pour des écoulements gaz-liquide et il ne considère x_L que comme un paramètre de calcul. Nous comparerons néanmoins les résultats de son équation aux écoulements co-courant liquide-liquide.

Ce modèle a deux inconvénients si on l'applique à un écoulement liquide-liquide :

- la nécessité de choisir la phase qui mouille entièrement le garnissage. En appliquant ce modèle, nous avons supposé que c'était la phase lourde en courant montant, la phase légère en courant descendant.
- d'autre part, la perte de charge frictionnelle du gaz est calculée au moyen de l'équation d'Ergun comme si le gaz s'écoulait le long d'un solide. Ceci expliquerait que les pertes de pression prédites sont parfois trop fortes.

Les Figures 8 et 9 donnent les résultats obtenus par le modèle de Sweeney avec les mesures de Grange et coll. [G 5]. On voit que la perte de pression est souvent surestimée (écart type 16 %) et que la rétention prédite recoupe la rétention mesurée (écart type 23 %).

• Modèle de filets

Pour pallier ces inconvénients, nous avons considéré un modèle de filets qui représente mieux l'écoulement observé (filets-gouttes). Le milieu poreux est alors représenté par un ensemble de pores interconnectés, ce qui convient mieux au garnissage utilisé qu'un modèle de sphères.

2.24 - Modèle du pore stratifié

a) - Hypothèses

Rappelons les principales hypothèses du modèle :

- la pression statique est uniforme en tout point d'une section perpendiculaire à l'écoulement (hypothèse de Lockart-Martinelli)

$$(\Delta P)_1 = (\Delta P)_2$$

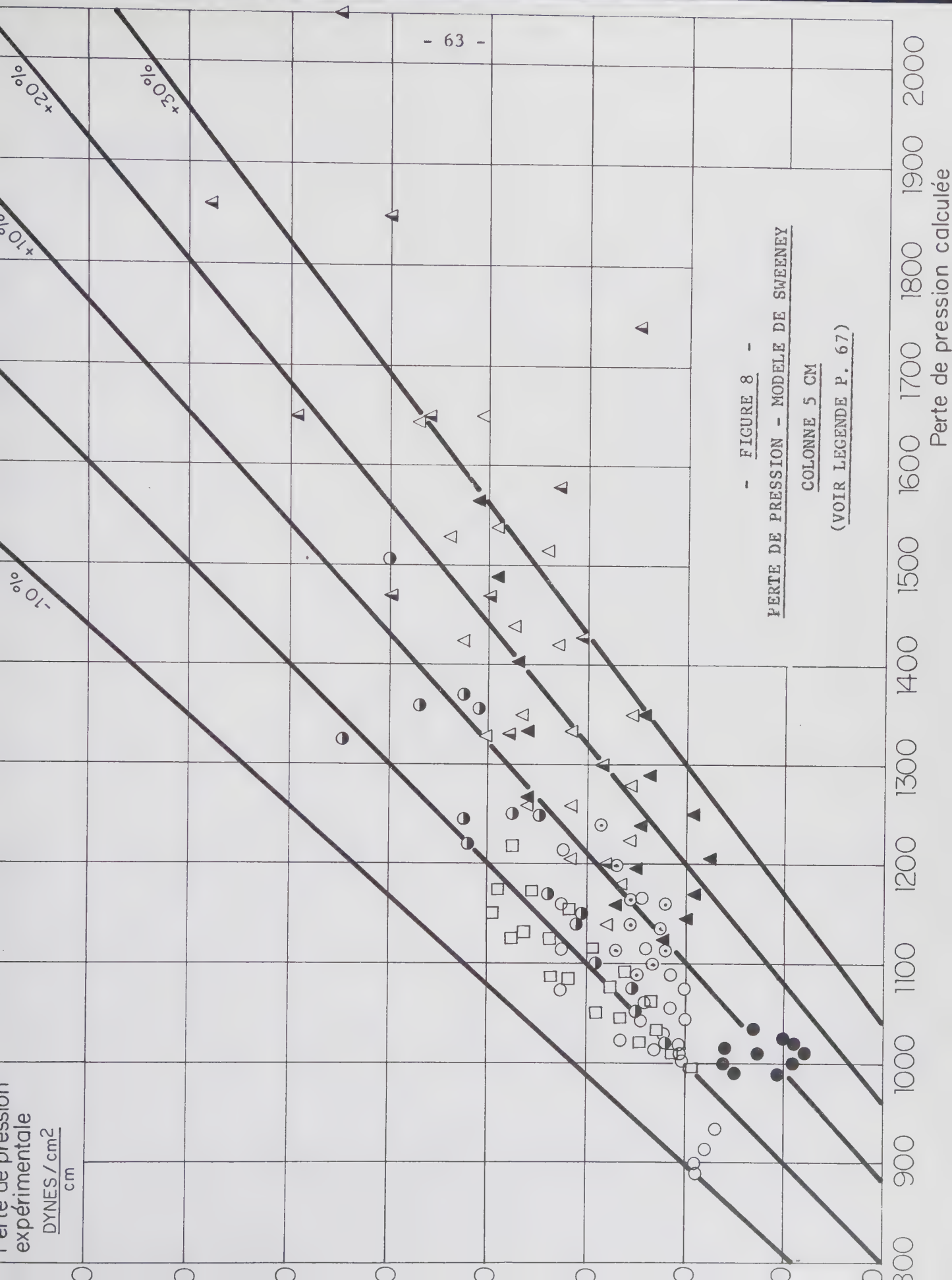
soit encore pour un courant ascendant :

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_T = \left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_1} - g \rho_1 = \left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_2} - g \rho_2 \quad (\text{II-24})$$

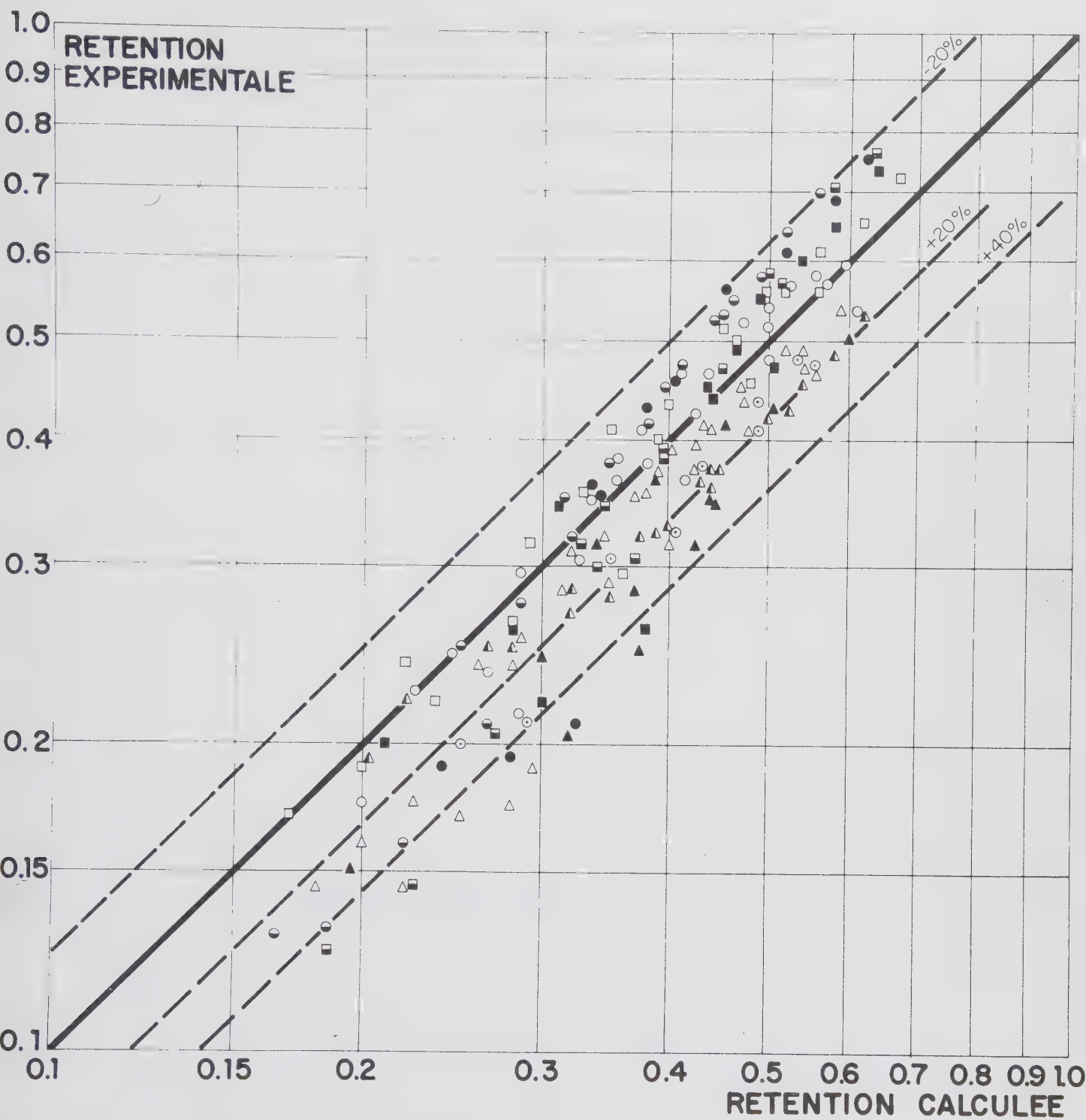
- la perte de charge frictionnelle de chaque veine fluide peut être exprimée en fonction des caractéristiques du lit, des débits et des propriétés des fluides et de la perte de charge de chaque veine fluide seule (hypothèse de Sweeney).

Perte de pression
expérimentale

$\frac{\text{DYNES}}{\text{cm}^2}$
cm







- FIGURE 9 -

RETENTION TOTALE - MODELE DE SWEENEY

COLONNE 5 CM

(VOIR LEGENDE P. 67)

Anneaux Pall (Polythène)

- Eau-n-Heptane
- ⊙ DMSO-n-Heptane
- Eau-Toluène
- △ Glycol-n-Heptane

Anneaux Raschig (Céramique)

- ◐ Eau-n-Heptane
- ▣ Eau-Toluène
- ▲ Glycol-n-Heptane

Anneaux Pall (Acier Inox)

- Eau-n-Heptane
- Eau-Toluène
- ▲ Glycol-n-Heptane

LEGENDE DES FIGURES 8, 9, 11, 13, 15, 16

- la perte de charge frictionnelle à l'interface des deux liquides est faible ou s'équilibre d'une phase sur l'autre, elle sera négligée. Ceci est justifié par le fait que pour deux liquides, les vitesses et les propriétés physiques sont du même ordre de grandeur.
- l'écoulement des deux veines dans le pore est supposé stratifié, les seules forces entrant en jeu étant la friction de chaque veine sur le garnissage et la charge statique (Figure 10).

b) - Exposé du modèle

Le système (II-18), (II-19) entraîne :

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_1} - f_1 g - \left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_2} + f_2 g = 0 \quad (II-25)$$

Les pertes de charge frictionnelle $\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_F$ sont calculées par l'équation d'Ergun pour des écoulements à surface libre.

- Diamètres hydrauliques des deux veines (cf. Figure 10)

$$\text{Phase 1} \quad \text{Surface} = \frac{\pi D_p^2}{4} x_1 \quad (II-26)$$

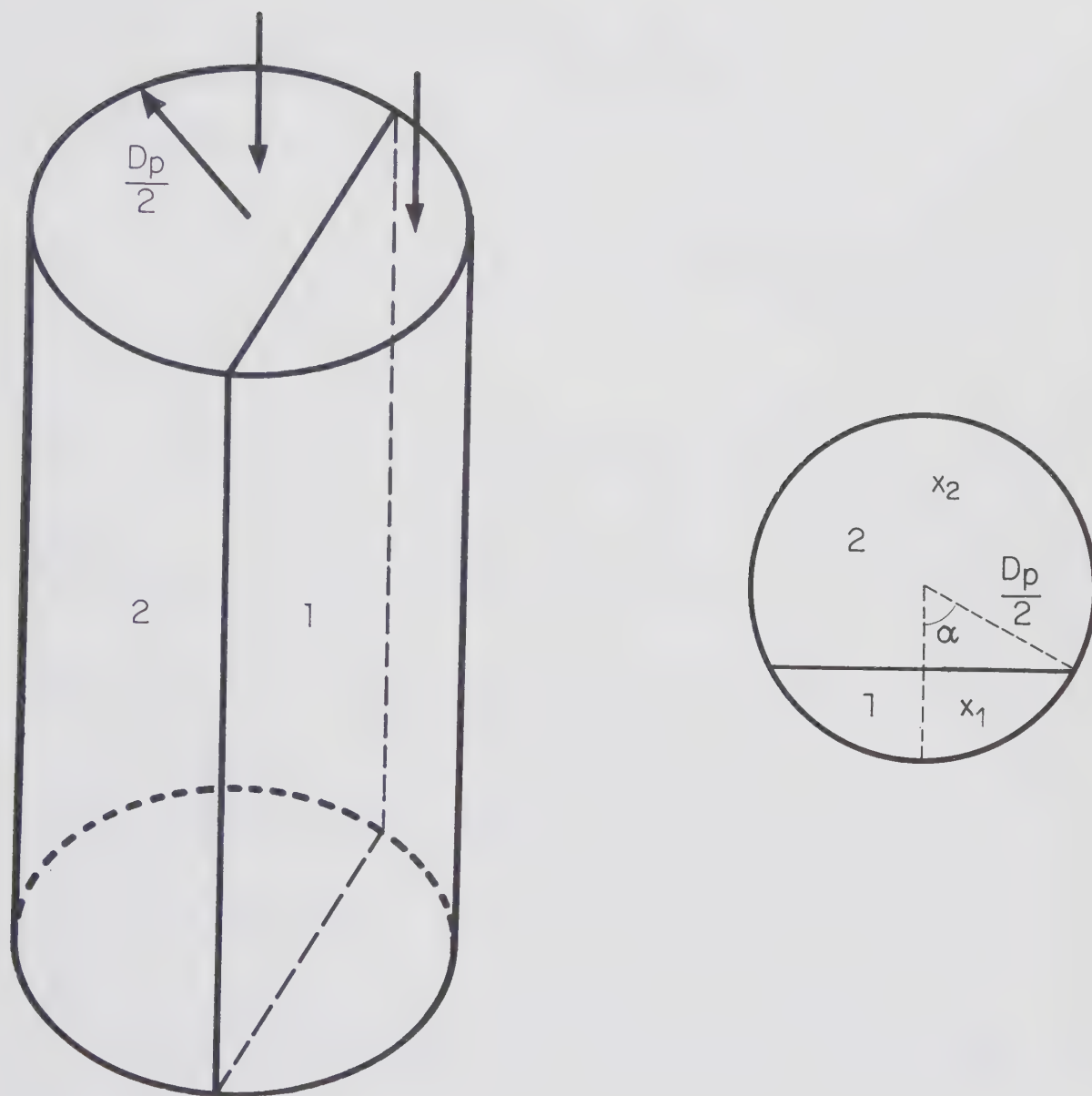
$$\text{Périmètre mouillé} = 2\alpha D_p / 2 \quad (II-27)$$

avec la relation :

$$\alpha = \pi x_1 + \frac{\sin 2\alpha}{2} \quad (II-28)$$

entre la fraction de surface occupée par la phase 1 et l'angle au centre (cf. Figure 10).

$$\text{d'où } D_{p_1} = 4 \frac{\text{section de passage}}{\text{périmètre mouillé}} = \frac{\pi}{\alpha} D_p x_1 \quad (II-29)$$



- FIGURE 10 -

ÉCOULEMENT STRATIFIÉ DANS UN PORE

$$\text{et } D_{p_2} = \frac{\pi}{\pi - \alpha} D_p (1 - x_1) \quad (\text{II-29})$$

• Vitesses des phases

$$U'_{o1} = \frac{U_{o1}}{x_1} \text{ et } U'_{o2} = \frac{U_{o2}}{1 - x_1} \quad (\text{II-30})$$

• Perte de charges frictionnelles

En écrivant l'équation d'Ergun (II-6) et en remplaçant le diamètre équivalent de l'élément par le diamètre hydraulique du pore au moyen de l'équation (II-5), on obtient :

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_1} = \frac{4}{9} K_1 \mu_1 \frac{U'_{o1}}{\varepsilon D_{p_1}^2} + \frac{2}{3} K_2 \rho_1 \frac{U'_{o1}{}^2}{\varepsilon^2 D_{p_1}^3} \quad (\text{II-31})$$

$$\text{En posant } A = \frac{4}{9} \frac{K_1}{D_p^2 \varepsilon} \text{ et } B = \frac{2}{3} \frac{K_2}{D_p \varepsilon^2} \quad (\text{II-32})$$

on obtient avec les équations (II-28, II-29 et II-30) :

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_1} = A \mu_1 U_{o1} \frac{\alpha^2}{\pi^2 x_1^3} + B \rho_1 U_{o1}^2 \frac{\alpha}{\pi x_1^3} \quad (\text{II-33})$$

et pour la phase 2 :

$$\left(\frac{\Delta P}{L} \right)_{F_2} = A \mu_2 U_{o2} \frac{(\pi - \alpha)^2}{\pi^2 (1 - x_1)^3} + B \rho_2 U_{o2}^2 \frac{\pi - \alpha}{\pi (1 - x_1)^3} \quad (\text{II-34})$$

On peut ainsi résoudre l'équation (II-25) pour avoir la rétention dynamique. La résolution de cette équation transcendante est faite sur ordinateur par approximations successives. En utilisant la rétention ainsi

calculée, on peut obtenir le gradient total de pression en utilisant l'équation (II-20).

c) - Résultats

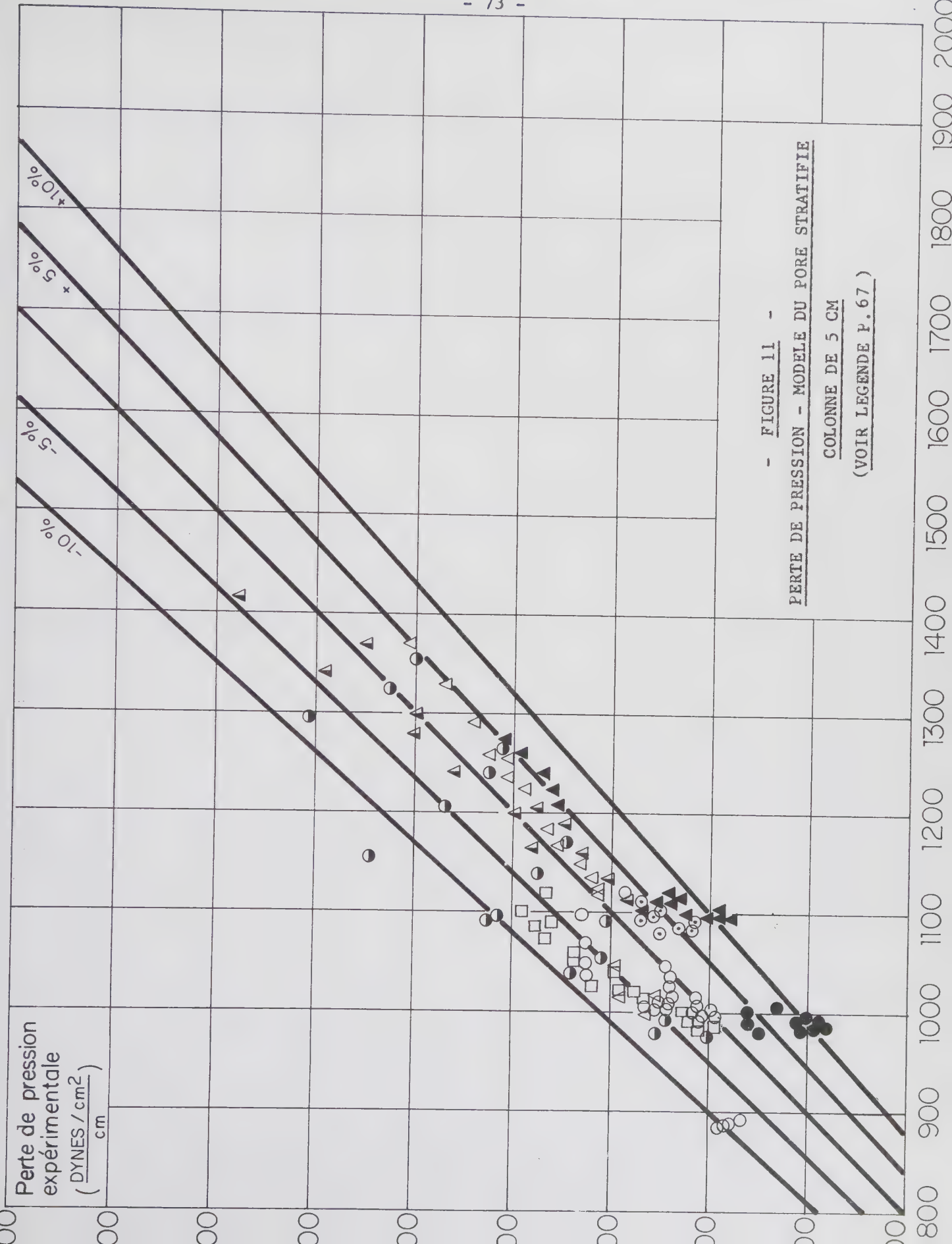
Ce modèle a été testé sur de nombreux cas. On trouvera dans le Tableau III les écarts type obtenus entre les pertes de pression expérimentales et calculées avec le modèle proposé et avec le modèle de Sweeney pour de nombreux résultats.

● Colonne de 5 cm de diamètre courant ascendant

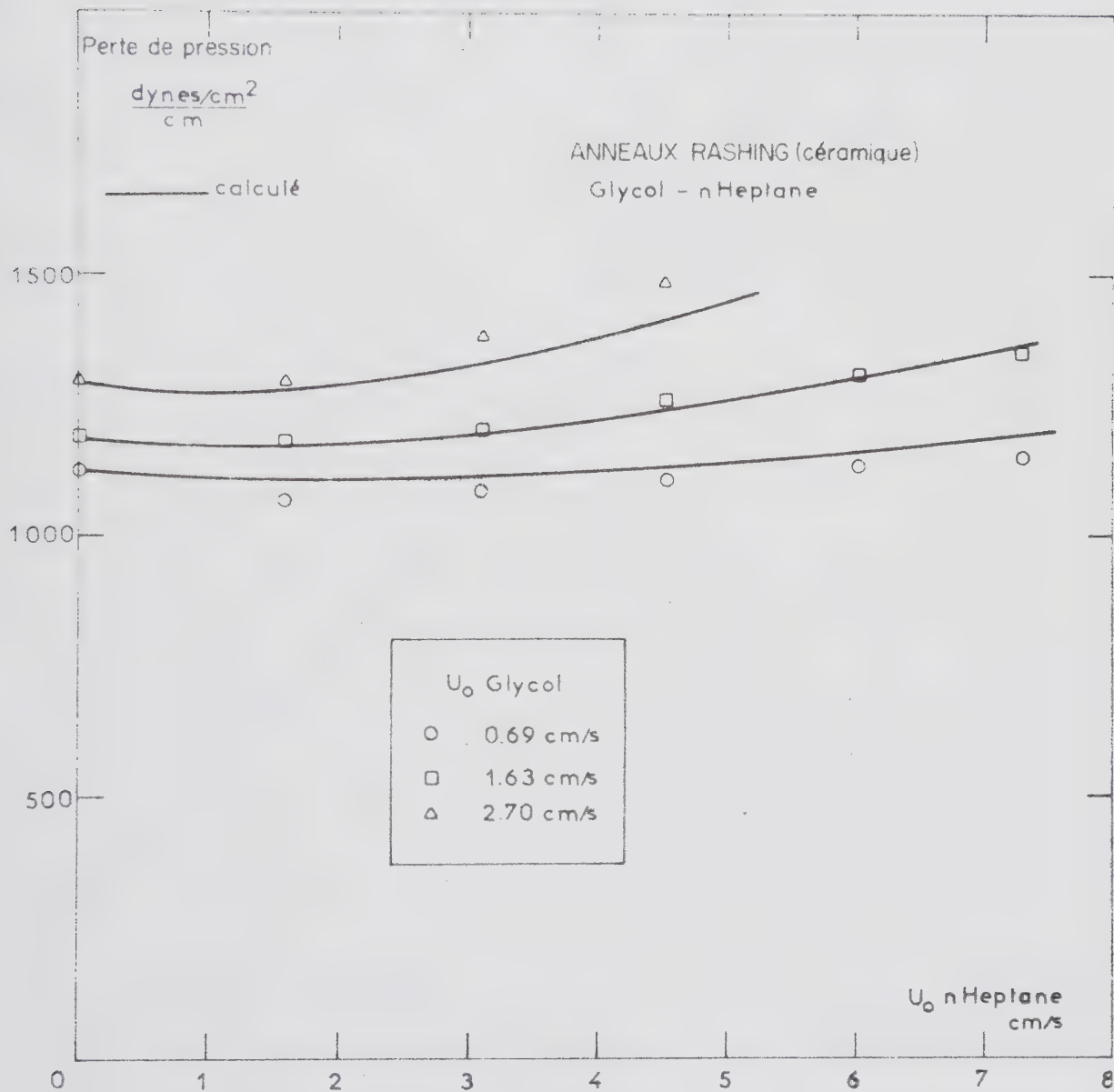
Nous avons comparé ce modèle [G 5] avec un ensemble de mesures à co-courant ascendant dans différents garnissages (Pall polythène, Anneaux Raschig, Pall acier). La comparaison des données expérimentales avec les valeurs de pertes de pression calculées est satisfaisante (Figures 11 et 12). L'écart quadratique moyen est de 5,4 % au lieu de 16 % avec le modèle de Sweeney, la majeure partie des points sont à ± 5 %, les autres se situant entre les droites ± 10 %. La perte de pression expérimentale étant relativement précise, on peut penser que le modèle représente bien les écoulements étudiés.

Le gradient total de pression, pour les écoulements liquide-liquide à co-courant, est composé en majeure partie de la charge statique $g \rho_m$, la perte de charge frictionnelle ne devenant importante qu'aux très grands débits. La rétention qui intervient dans la densité moyenne étant la rétention dynamique, la bonne correspondance entre les pertes de pression, calculées et expérimentales (Figure 11), permet de conclure que le modèle du pore stratifié prédit convenablement cette rétention dynamique.

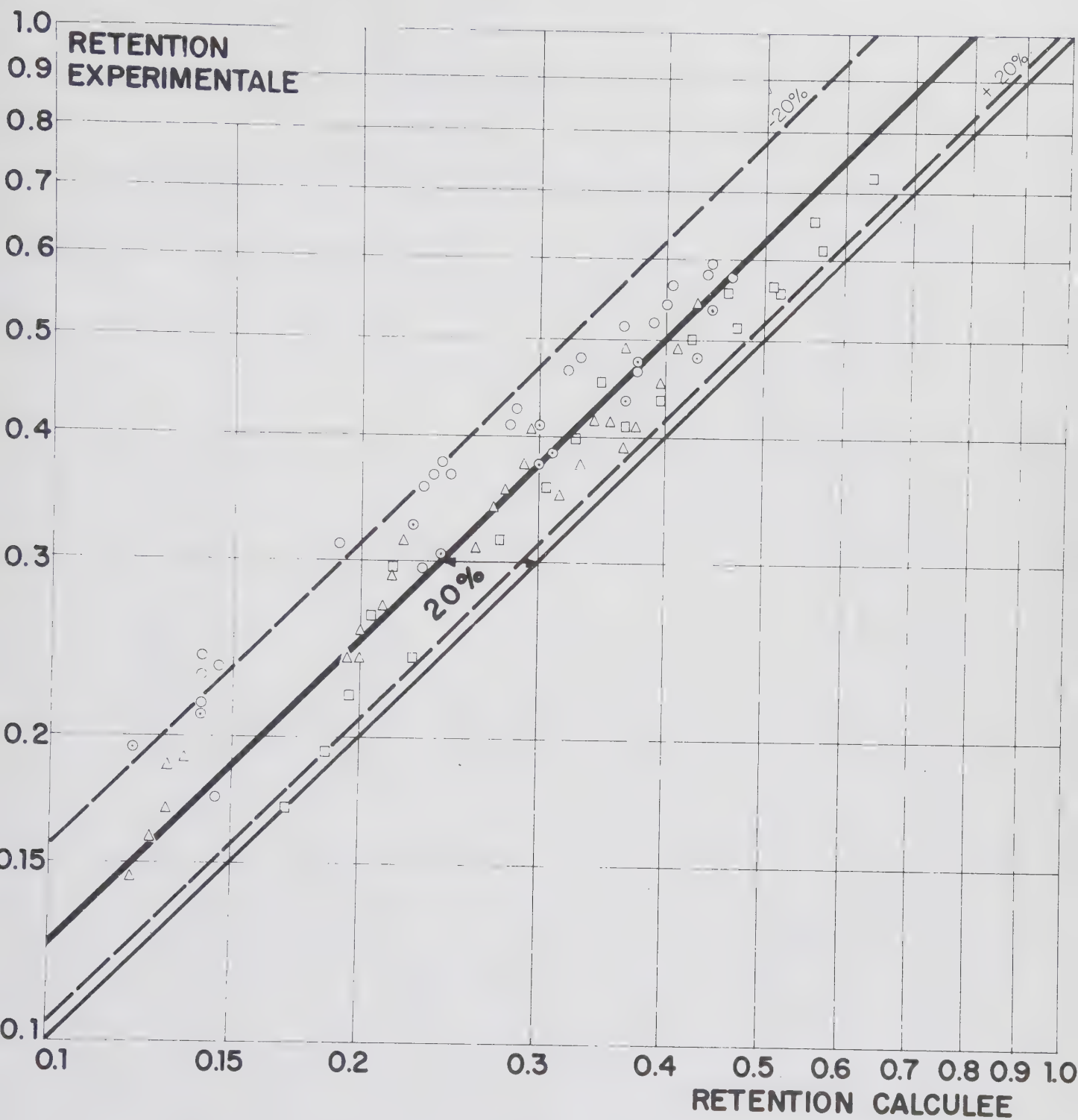
La comparaison de la rétention dynamique calculée à la rétention totale (à x_c près) mesurée montre un écart systématique, par exemple (voir Figure 13) pour les anneaux Pall en polythène. Les points se répartissent







- FIGURE 12 -
COMPARAISON ENTRE PERTE DE PRESSION EXPERIMENTALE ET CALCULEE
PAR LE MODELE DU PORE STRATIFIE



- FIGURE 13 -

RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE
ANNEAUX PALL EN POLYTHENE (COLONNE 5 CM)

(VOIR LEGENDE P. 67)

- TABLEAU III -

ECART TYPE SUR LES PERTES DE PRESSION - MODELE DU PORE STRATIFIE ET MODELE DE SWEENEY

Fluides lourd - léger	Garnissage		Diamètre colonne cm	Sens de l'écoulement	Ecart type sur ΔP_T^1 en %	
	Type	Taille cm			Modèle pore stratifié	Modèle de Sweeney
Eau - n Heptane.....	Pall polythène	1,5	5	Ascendant ²	3,2	6,1
DMSO ¹ - n Heptane...	Pall polythène	1,5	5	Ascendant ²	4,0	10,0
Eau - Toluène.....	Pall polythène	1,5	5	Ascendant ²	5,0	3,1
Glycol - n Heptane.	Pall polythène	1,5	5	Ascendant ²	3,1	22
Eau - n Heptane.....	Raschig	1,1x1,1x1,5	5	Ascendant ²	6,4	7,5
Glycol - n Heptane.	Raschig	1,1x1,1x1,5	5	Ascendant ²	3,7	31
Eau - n Heptane.....	Pall acier	1,5	5	Ascendant ²	7,6	11
Glycol - n Heptane.	Pall acier	1,5	5	Ascendant ²	7,2	21
Eau - Isooctane.....	Pall polythène	1,5	5	Descendant	2,1	9,1
Eau - Isooctane.....	Pall polythène	1,5	15	Descendant	7,4	9,2

1 DMSO = diméthyl sulfoxyde

2 chiffres de Grange [G 5]

autour d'une droite située à - 20 % de la première bissectrice avec une précision de 20 %. Nous avons assimilé cet écart à la rétention stationnaire.

Sur la Figure 14, pour différents débits de phase continue (lourde en courant ascendant), nous avons porté en fonction du débit de phase dispersée :

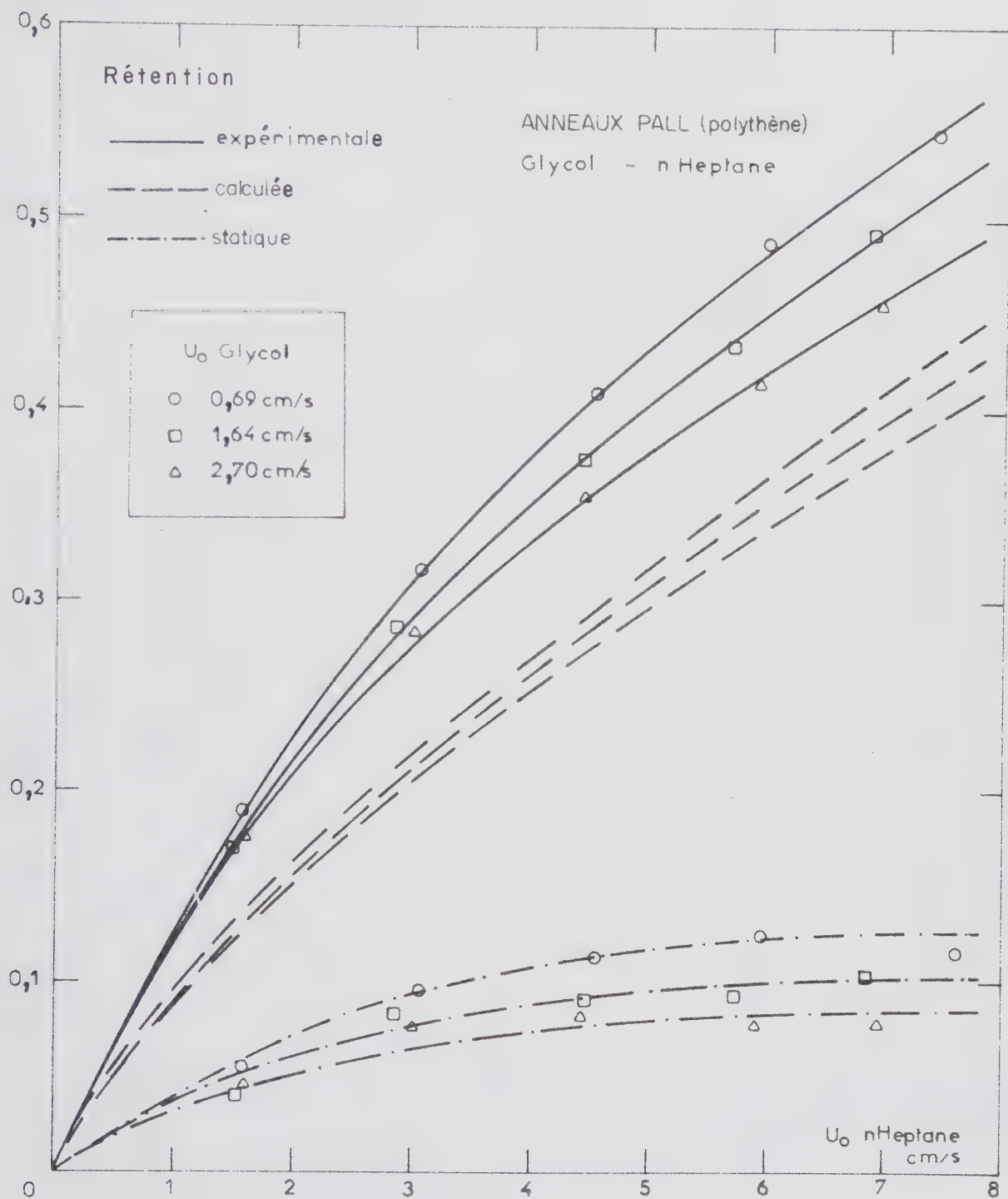
- la rétention expérimentale assimilable à la rétention totale x_T
- la rétention calculée par le modèle ou rétention dynamique x_d
- la différence $x_T - x_d$ que nous assimilons à la rétention stationnaire x_S

On peut constater que x_S , bien que tendant vers une limite, varie à peu près comme la rétention totale. Ce qui explique qu'à la précision des mesures, on trouve que x_S est une fraction sensiblement constante de x_T .

Pour les anneaux Pall en acier (Figure 15), la rétention stationnaire serait de l'ordre de 40 %, par contre, pour les anneaux Raschig (Figure 16) les points se répartissent autour de la première bissectrice. Ceci s'explique par les différences de géométrie et de mouillabilité de ces garnissages. Dans les anneaux Pall, l'écoulement est plus ramifié et les points d'arrêt plus nombreux que dans les anneaux Raschig. En outre, les éléments en acier retiennent davantage l'eau que les éléments en plastique.

● Colonnes de 5 cm de diamètre courant descendant

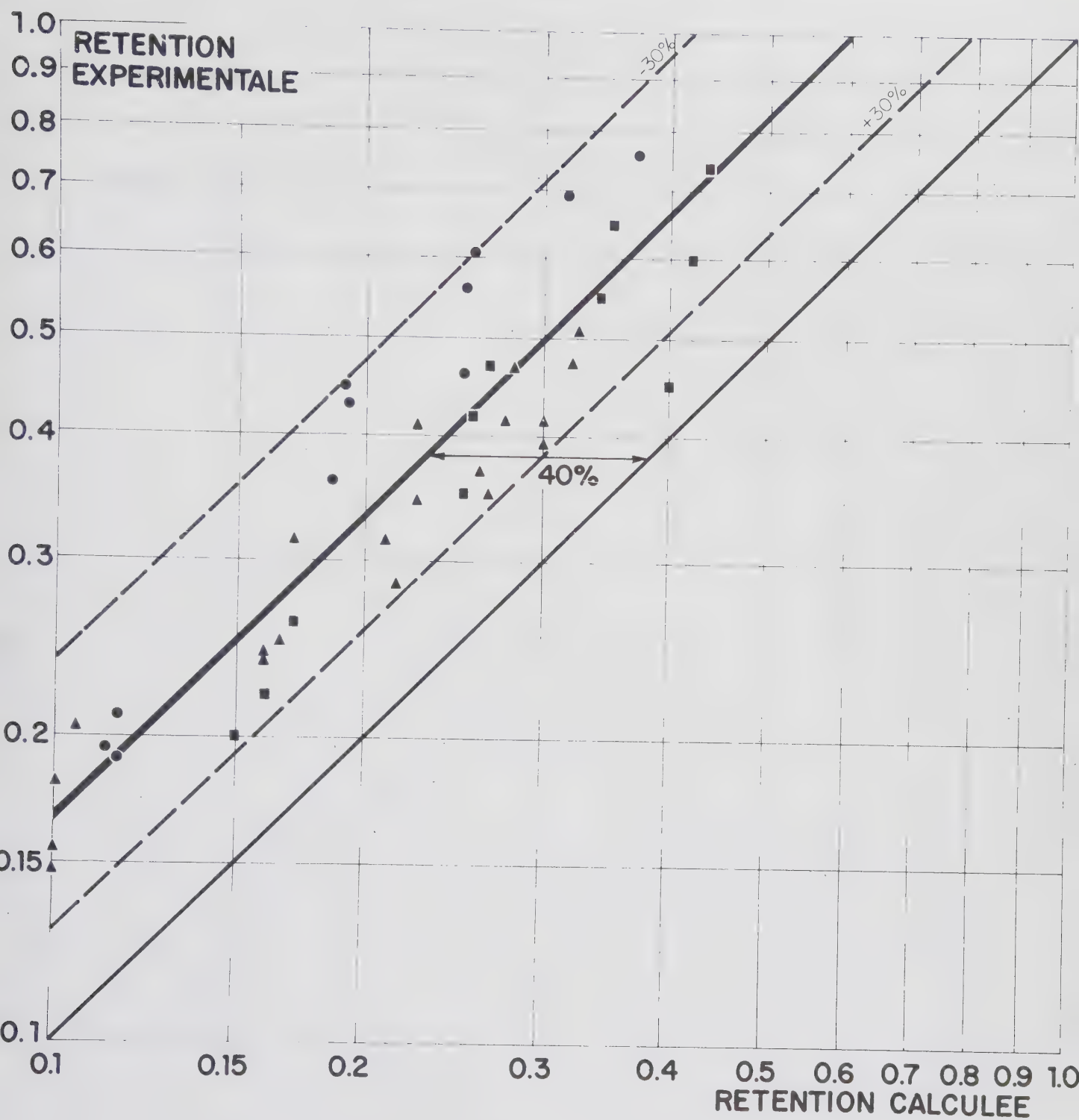
Des mesures portant sur des écoulements d'eau-isooctane et d'eau-décaline ont été faites (avec la collaboration de M. Soichet [R 5]), les mesures de rétention étant effectuées par décantation. D'autres mesures au moyen du temps de séjour moyen ont été effectuées (avec la collaboration de M. Sallaly [S 2]). Ces trois séries de mesures ont été effectuées sur colonne de 5 cm de diamètre avec des garnissages d'anneaux Pall en polythène. En appliquant le modèle du pore stratifié (Figure 17), on obtient une rétention



- FIGURE 14 -

EXEMPLE DE RESULTATS DE RETENTION





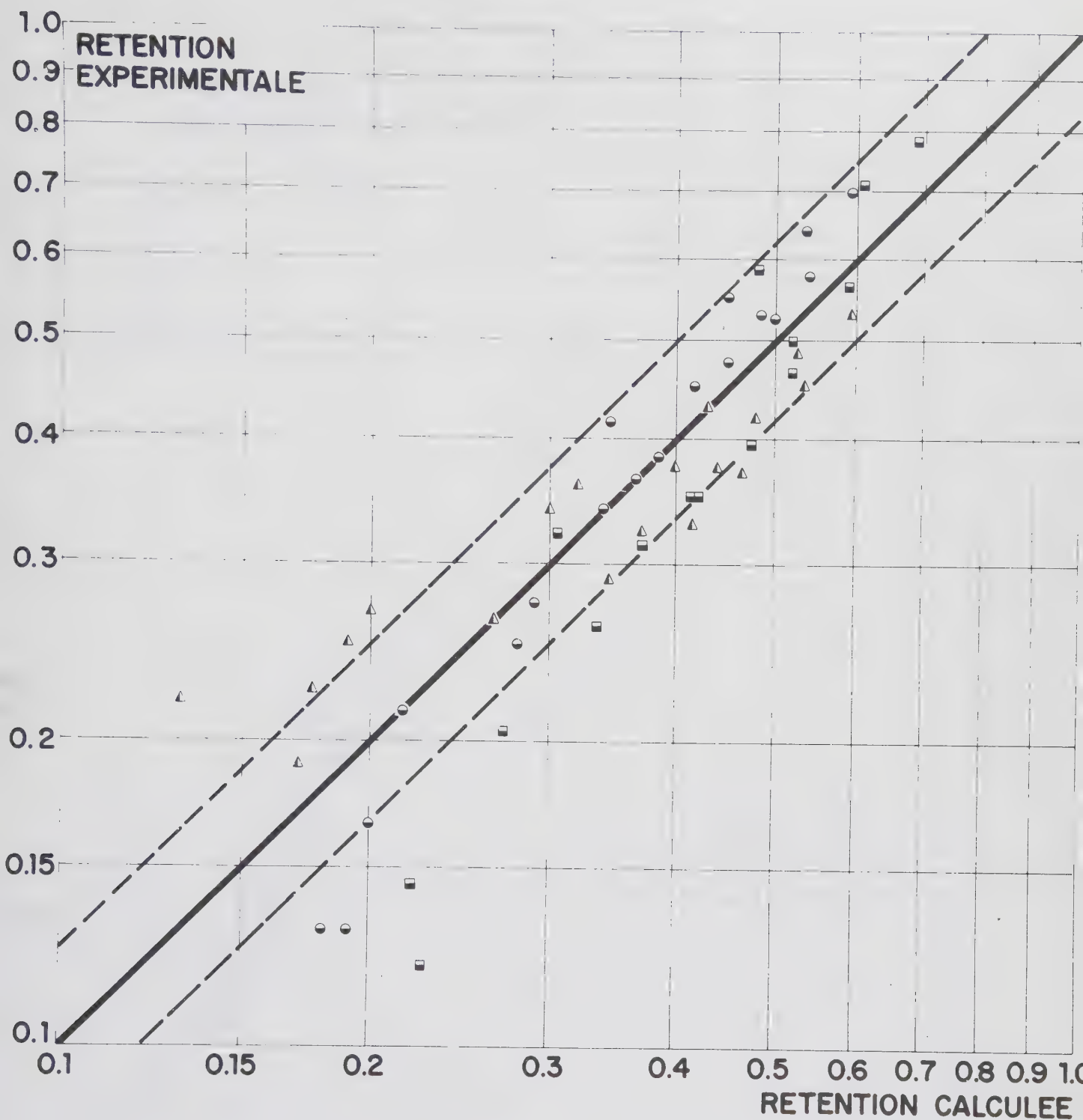
- FIGURE 15 -

RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE

ANNEAUX PALL ACIER

(VOIR LEGENDE P. 67)





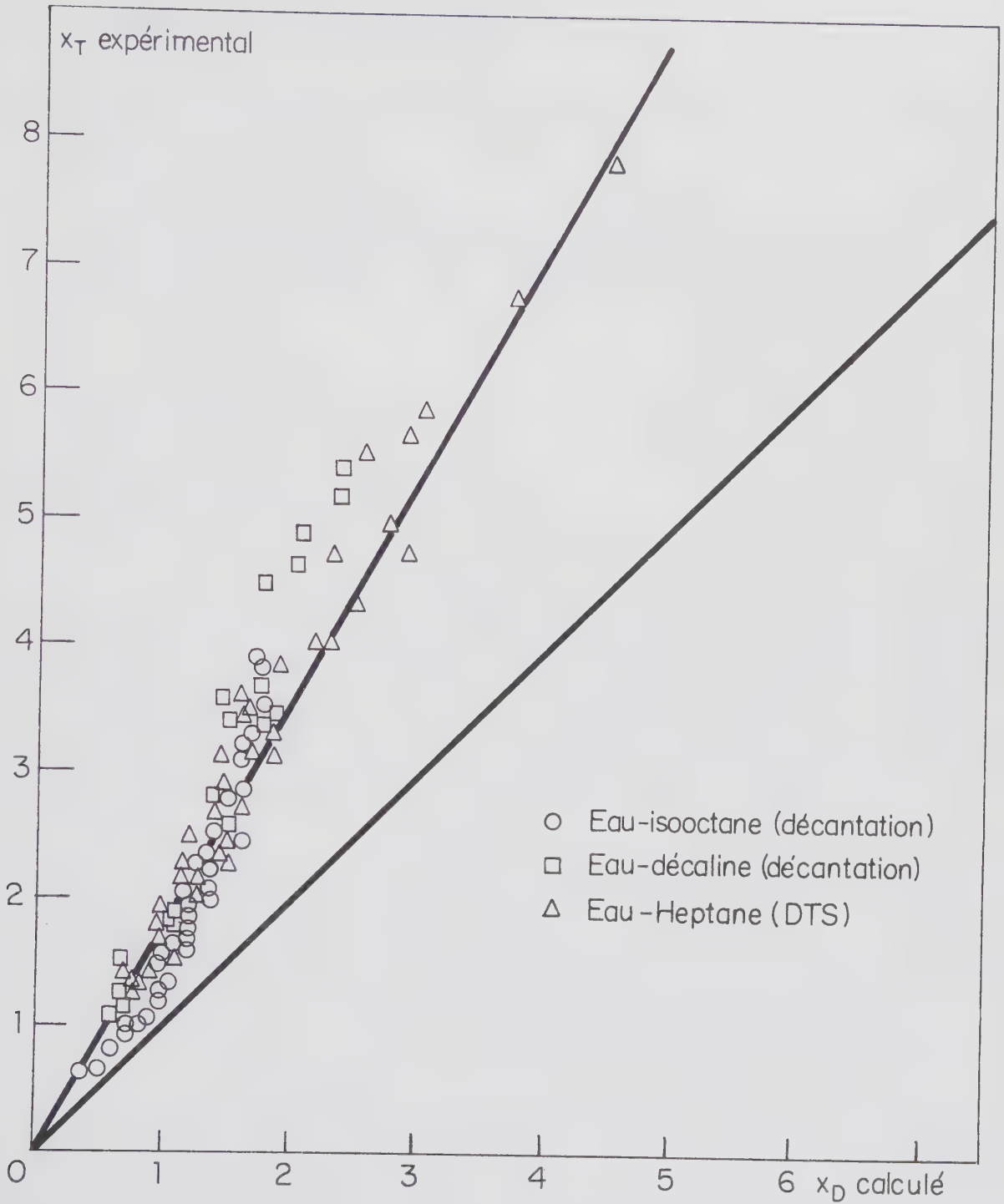
- FIGURE 16 -

RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE

ANNEAUX RASCHIG (COLONNE DE 5 CM)

(VOIR LEGENDE P. 67)





- FIGURE 17 -

RETENTION - MODELE DU PORE STRATIFIE
ANNEAUX PALL EN PLASTIQUE - COLONNE 5 CM
COURANT DESCENDANT

stationnaire de l'ordre de 40 % de la rétention totale.

- Colonne de 15 cm de diamètre

Deux séries de mesures de rétention ont été effectuées sur cet appareil :

- mesures par déplacement avec des coefficients d'Ergun de 360 et 2,6
- mesures par le temps de séjour moyen et par déplacement avec des coefficients 400 et 4

Ces chiffres sont comparés à ceux obtenus par le modèle sur la Figure 18. La rétention stationnaire est de l'ordre de 30 %.

- Application aux écoulements gaz-liquide

Nous avons appliqué le modèle pour la prédiction des rétentions non capillaires mesurées par Charpentier [C 3] pour des écoulements gaz-liquide dans des garnissages d'anneaux Raschig [R 3]. Le Tableau IV rappelle les caractéristiques des lits utilisés, le gaz étant toujours de l'air. La Figure 19 représente, pour tous les résultats, la rétention non capillaire expérimentale en fonction de celle calculée par le modèle.

L'écart type pour les 500 mesures est de l'ordre de 25 %, alors qu'en utilisant le modèle de Sweeney, il est de l'ordre de 70 %. Par rapport à la relation semi-empirique présentée par Bakos et Charpentier [B 1] à partir des mêmes mesures, la précision est à peu près identique.

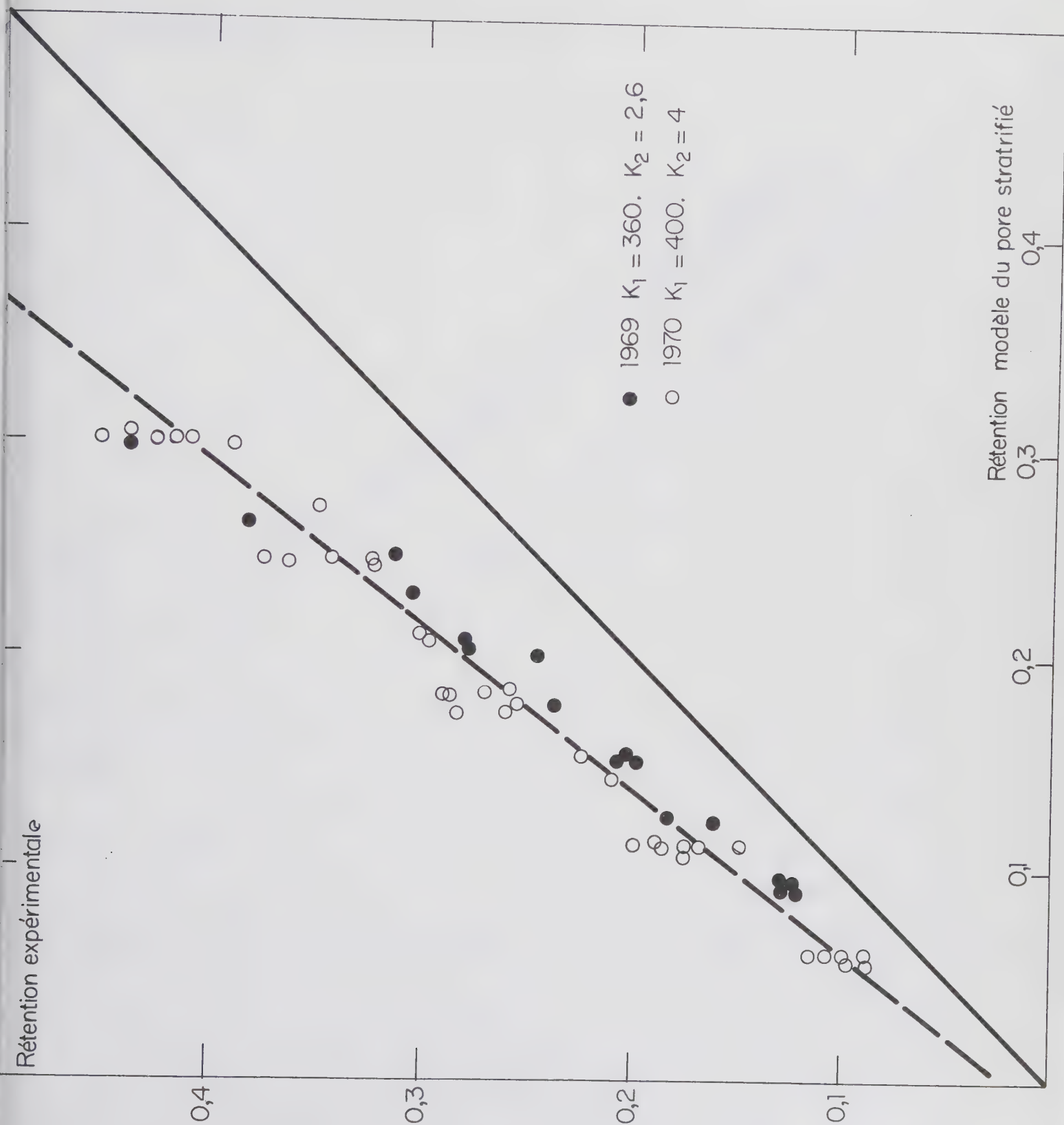
d) - Conclusion

Pour les écoulements liquide-liquide, le modèle du pore stratifié sans interaction prédit convenablement le gradient total de pression quand les vitesses des fluides ne sont pas très différentes. Le modèle prédit la

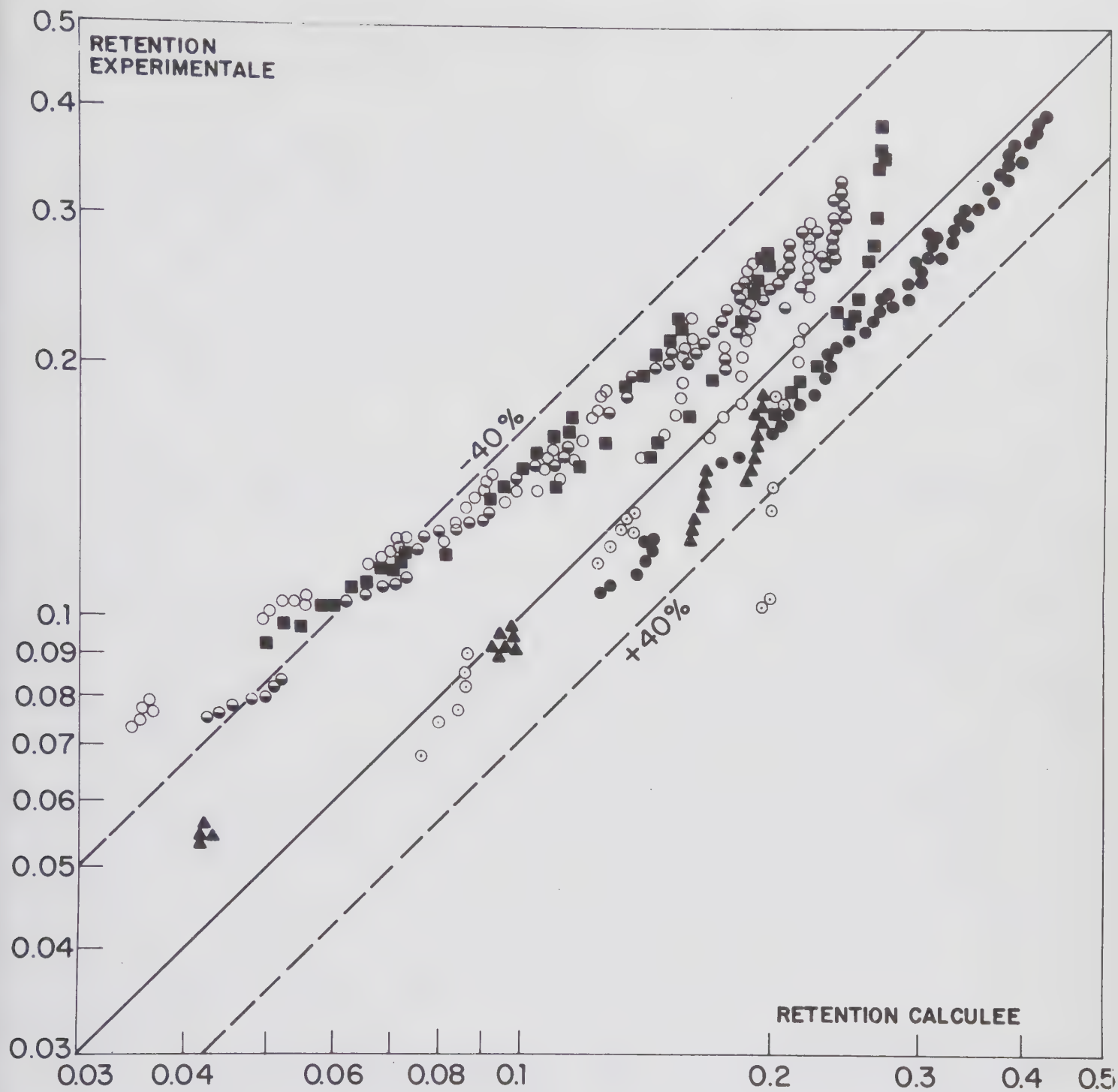
- TABLEAU IV -

CARACTERISTIQUES DES LITS UTILISES POUR L'ECOLEMENT GAZ-LIQUIDE C 3

Garnissage		Porosité	Sg (cm ⁻¹)	Coefficients de l'équation d'Ergun		Liquide	Symbole sur la figure 19
Type	Dimension (mm)			K ₁	K ₂		
a.R.	6,4	0,70	28,18	306	3,05	Eau	■
a.R.	10,3	0,67	13,60	407	3,33	Eau	○
a.R. siliconés	10,3	0,69	13,60	576	2,89	Eau	◉
a.R.	10,3	0,67	13,60	407	3,33	Solution d'isopropanol	●
a.R.	10,3	0,67	13,60	407	3,33	Solution de saccharose	●
a.R.	22	0,73	6,88	1436	5,23	Eau	△



- FIGURE 18 -
RESULTAT DU MODELE DU PORE STRATIFIE POUR
LA COLONNE DE 15 CM DE DIAMETRE



- FIGURE 19 -

MODELE DU PORE STRATIFIE
ECOULEMENTS GAZ-LIQUIDE

rétenction dynamique et on estime la rétenction stationnaire par différence avec la rétenction totale stationnaire.

Pour les écoulements gaz-liquide, le modèle calcule des gradients de pression presque deux fois plus faibles que les résultats expérimentaux. En introduisant une interaction à l'interface (calculée à partir d'une vitesse interfaciale), les résultats de rétenction restent à peu près les mêmes. Les pertes de pression augmentent mais pas assez pour être valablement comparées aux valeurs expérimentales. Pour la rétenction, le modèle a l'avantage d'être prédictif c'est-à-dire qu'il peut être établi sans mesures en écoulement diphasique.

2.25 - Rétenction dynamique obtenue à partir des mesures de différence de pression

Nous avons expliqué comment (cf. 2.24) on estime la rétenction stationnaire par différence entre la rétenction totale mesurée et la rétenction dynamique prédite par le modèle du pore stratifié. On peut également obtenir x_D à partir de la mesure expérimentale du gradient de pression.

En effet, la perte de pression, pour un co-courant descendant, entre deux points de la colonne est due à un terme de pression statique diminué de la perte de charge frictionnelle :

$$P_2 - P_1 = \Delta P_T = Lg \rho_m - \Delta P_F \quad (\text{II-35})$$

$$\text{où } \rho_m = x_d \rho_2 + (1 - x_d) \rho_1$$

Dans l'équation (II-35) la perte de charge frictionnelle est faible par rapport à l'effet de la rétenction (moins de 10 % pour les garnissages utilisés). La mesure de la différence de pression permet de déterminer ρ_m (donc la rétenction dynamique) à condition d'estimer, même de façon approchée

le terme ΔP_F . Le calcul est fait à partir de la dénivellation manométrique (équation II-9) et on obtient avec l'équation (II-35)

$$x_d = \frac{\Delta P_F}{Lg \Delta \rho} - \frac{h}{L} \quad (\text{II-36})$$

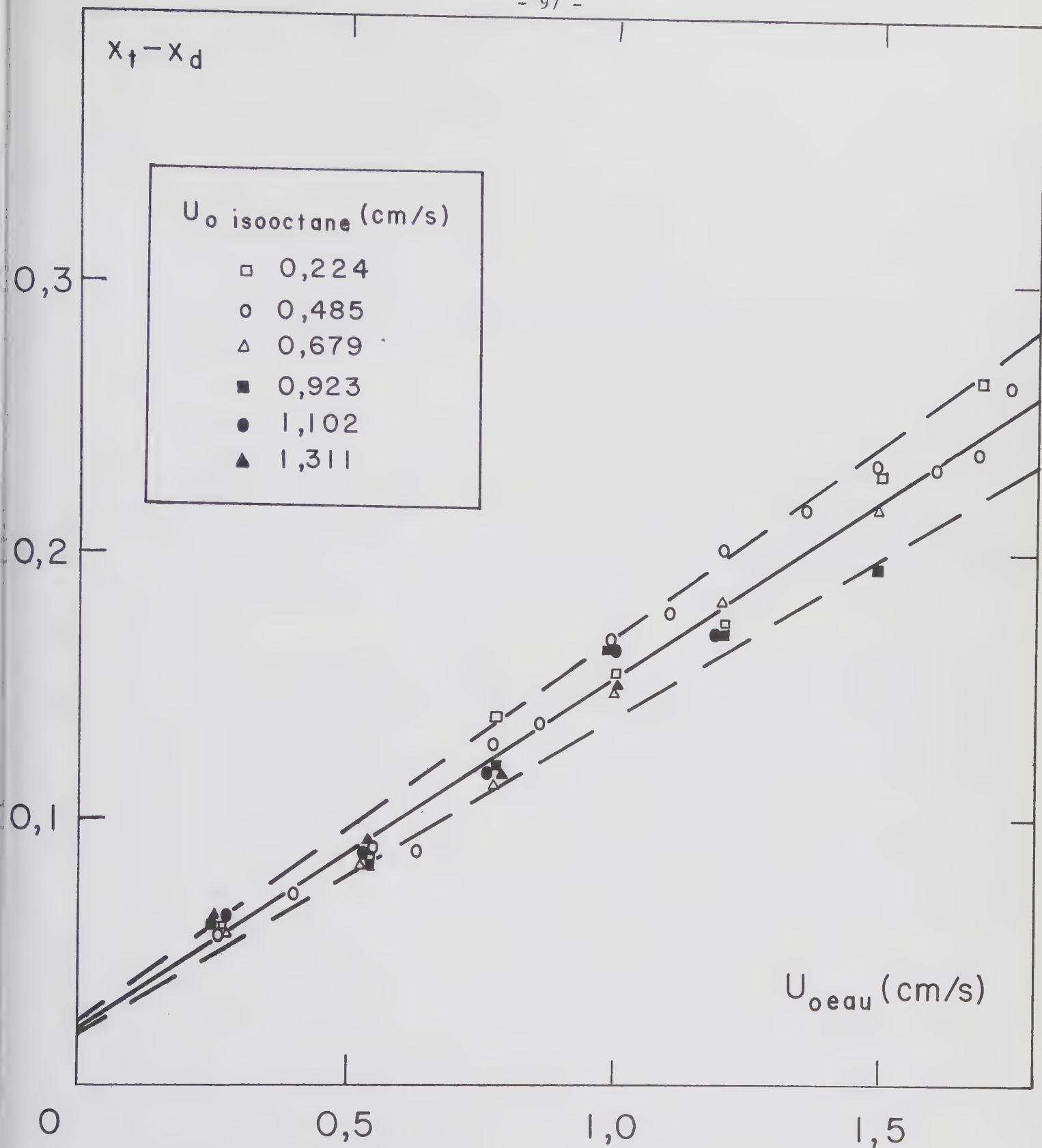
où h est la dénivellation manométrique.

Nous avons appliqué cette méthode aux mesures avec l'eau et l'isooctane dans une colonne de 5 cm de diamètre remplie d'anneaux Pall en plastique. Les mesures de rétention totale étant effectuées par décantation hors de la colonne.

Pour déterminer ΔP_F après avoir calculé les pertes de charge qu'aurait chaque liquide s'il s'écoulait seul dans la colonne à la vitesse totale des deux fluides, on s'est contenté de pondérer par rapport à la rétention dynamique.

Sur la Figure 20 la différence entre la rétention totale expérimentale et la rétention dynamique calculée par l'équation (II-36) est portée en fonction de la vitesse de phase dispersée. La rétention stationnaire ainsi déterminée, représente plus de la moitié de la rétention totale. Le résultat est donc plus important que celui obtenu par le modèle du pore stratifié qui, avec les mêmes mesures, donne une rétention stationnaire de l'ordre de 40 % de la rétention totale.

Cette méthode n'a pu être appliquée qu'aux résultats présentés sur la Figure 20. En effet, pour les autres résultats, ou bien les mesures de perte de pression n'ont pas été effectuées, ou bien la présence de filets dans l'écoulement de phase dispersée change la composition de la charge statique.



- FIGURE 20 -

RETENTION STATIONNAIRE OBTENUE A PARTIR DE LA MESURE DU GRADIENT DE PRESSION

C O N C L U S I O N

Du point de vue expérimental, l'obtention de résultats précis est très difficile surtout parce que la rétention est un phénomène fluctuant.

Analysant les résultats expérimentaux, on a montré l'existence d'une rétention stationnaire participant à l'écoulement.

Connaissant la rétention totale et les pertes de charge monophasiques, on peut obtenir la rétention stationnaire en calculant la rétention dynamique de deux façons : soit à partir de la valeur expérimentale de la perte de pression, soit au moyen du modèle du pore stratifié. Ces deux méthodes, si elles montrent l'existence d'une rétention stationnaire importante, ne la calculent pas de manière satisfaisante. En effet, les résultats obtenus sont très imprécis et ne sont pas absolument identiques.

La rétention stationnaire, telle qu'elle a été définie, influence notablement la distribution des temps de séjour. Le modèle de mélange axial, qui est établi dans le chapitre suivant et qui tient compte de l'arrêt aléatoire des gouttes et de leur départ au hasard, fait intervenir cette quantité de phase à l'arrêt.

- CHAPITRE III -

MELANGE AXIAL

- P L A N -

<u>INTRODUCTION.....</u>	104
<u>3.1 - INTERPRETATIONS EXISTANTES.....</u>	105
3.11 - <u>Introduction.....</u>	105
3.12 - <u>Modèles à un paramètre.....</u>	106
a) - <u>Modèle PD.....</u>	106
b) - <u>Cellules parfaitement mélangées en série.....</u>	108
3.13 - <u>Modèles à plus d'un paramètre de mélange.....</u>	108
a) - <u>Modèle PE.....</u>	108
b) - <u>Modèle PDE.....</u>	111
c) - <u>Cellules parfaitement mélangées en série avec débits de re-</u> <u>tour.....</u>	112
d) - <u>Modèles combinés.....</u>	112
3.14 - <u>Modèles statistiques.....</u>	112
<u>3.2 - MESURES.....</u>	117
3.21 - <u>Mélange axial en phase dispersée.....</u>	117
a) - <u>Techniques de mesures.....</u>	117
b) - <u>Résultats.....</u>	120

3.22 - <u>Mélange axial en phase continue</u>	120
a) - <u>Techniques de mesures</u>	120
b) - <u>Résultats</u>	128
3.3 - <u>MODELE STATISTIQUE</u>	128
3.31 - <u>Introduction</u>	137
3.32 - <u>Définitions des grandeurs moyennes</u>	138
a) - <u>Temps de séjour d'une goutte individuelle</u>	138
b) - <u>Valeurs moyennes pour une goutte</u>	138
c) - <u>Valeurs moyennes pour toutes les gouttes</u>	139
d) - <u>Relations avec les rétentions</u>	139
3.33 - <u>Lois de distribution</u>	140
a) - <u>Fréquences d'arrêt et de départ</u>	140
b) - <u>Lois de distribution</u>	140
c) - <u>Calcul de la distribution des temps de séjour</u>	140
3.34 - <u>Résultats</u>	142
3.4 - <u>COMPARAISON DES RESULTATS A CEUX DE LA LITTERATURE</u>	157
3.41 - <u>Ecoulement monophasique</u>	157
3.42 - <u>Ecoulement diphasique</u>	157
<u>CONCLUSION</u>	162

I N T R O D U C T I O N

La rétention stationnaire, définie dans le chapitre précédent, influence le mélange axial de la phase dispersée. Il est possible d'estimer cette quantité de phase à l'arrêt en interprétant les mesures de distribution des temps de séjour au moyen d'un modèle approprié.

D'autre part, le mélange axial influence notablement le transfert de matière, en effet, il tend à uniformiser les concentrations et à réduire la force motrice. Ce phénomène amène une distribution des temps de séjour des paquets fluides dans la colonne. Pour les fractions qui restent longtemps dans l'appareil, la différence de concentration qui régit le transfert s'amoit et devient inefficace, d'autre part, le temps de séjour d'une autre partie des fluides est plus court et l'échange de matière n'a plus le temps de s'accomplir parfaitement.

Pour obtenir l'efficacité d'un appareil, il faut pouvoir, par l'intermédiaire d'un modèle approprié, évaluer la contribution du mélange axial dans chaque phase, c'est ce que nous étudierons au chapitre IV.

3.1 - INTERPRETATIONS EXISTANTES

3.11 - Introduction

Le mélange axial de chacune des phases s'écoulant dans un appareil est le phénomène qui tend à uniformiser les concentrations d'un bout à l'autre de l'appareil en fonctionnement, c'est-à-dire dans lequel les phases échangent de la matière.

Les deux cas limites de ce phénomène sont :

- l'appareil en mélange parfait (mélangeur parfait) dans lequel les phases passent directement de leurs concentrations d'entrée à leurs concentrations de sortie.
- l'appareil en écoulement piston dans lequel les phases s'écoulent sans mélange axial.

Ce phénomène a pour conséquence un étalement de la distribution des temps de séjour des paquets fluides dans chaque phase. Deux techniques sont utilisées pour mesurer le mélange axial : soit mesurer les profils de concentrations quand il y a transfert en régime stationnaire, soit mesurer à la sortie de la colonne la distribution des temps de séjour d'une impulsion de traceur.

Nous avons regroupé en trois classes les modèles de distribution des temps de séjour :

- les modèles simples (modèle diffusionnel et cellule en série) qui possèdent un seul paramètre de mélange et qui représentent souvent mal la distribution des temps de séjour.

- les modèles plus complexes qui possèdent plus d'un paramètre de mélange et comportent généralement des zones stagnantes.
- les modèles statistiques.

3.12 - Modèles à un paramètre

Le modèle diffusionnel vise à décrire un contact continu et le modèle par étage s'applique mieux au cas d'un contact discontinu. On peut toutefois remarquer que cette distinction devient artificielle dans la mesure où ces deux modèles deviennent équivalents pour un grand nombre d'étages.

a) - Modèle PD

Ce modèle présenté par Danckwerts [D 1] et Levenspiel et Smith [L 8] peut être appelé "Ecoulement piston avec dispersion axiale". Le mélange axial est caractérisé comme l'est une diffusion moléculaire avec un coefficient de diffusion E. La forme sans dimension de ce coefficient étant le nombre de Peclet :

$$Pe = \frac{U L}{E} \quad (\text{III-1})$$

où L est la longueur de l'appareil et U la vitesse de la phase considérée.

L'équation de bilan pour une tranche s'écrit :

$$- E \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + U_0 \frac{\partial C}{\partial z} + x_T \frac{\partial C}{\partial t} = 0 \quad (\text{III-2})$$

La rétention qui intervient dans cette équation est la rétention totale et non pas la rétention dynamique parce que ce modèle ne tient pas compte de la texture de la phase dispersée.

L'intégration de cette équation donne la distribution des temps de séjour. Les conditions aux limites sont différentes selon le type de l'appareil et les manières dont sont effectuées l'introduction et la prise d'échantillon du traceur [L 7]. Une extrémité de l'appareil sera appelée "ouverte" s'il n'y a pas de discontinuité dans l'écoulement supposé infini. D'autre part, elle sera notée "fermée" à la dispersion, si l'on passe de manière discontinue d'un écoulement piston à un état mélangé.

La rétention et le nombre de Peclet peuvent être immédiatement calculés à partir des deux premiers moments de la courbe de réponse : temps de séjour moyen et variance ([L 7] et Tableau V). On peut également obtenir le nombre de Peclet par optimisation (cf. annexe C) entre les points pris sur la courbe expérimentale et la courbe calculée. Examinons plus en détail les deux cas que nous avons utilisés pour déterminer la rétention et le nombre de Peclet.

- Cas fermé-ouvert : Comme nous le verrons au paragraphe 3.3, le mélange axial de la phase dispersée se fait sans retour en arrière des gouttes constituant cette phase. Il n'y a donc pas à considérer de conditions aux limites particulières pour cette phase. Cependant, pour appliquer le modèle PD, il convient d'utiliser le cas fermé-ouvert. En effet, l'introduction de cette phase se fait avec discontinuité et est donc fermée à la diffusion. La sortie de cette phase se faisant sans discontinuité (si ce n'est l'interruption du garnissage) ne sera pas fermée à la dispersion.
- Cas ouvert-ouvert : Pour la phase continue, l'introduction et la prise d'échantillon du traceur se font sans discontinuité.

Ces distinctions ne sont importantes que si le nombre de Peclet est inférieur à 10, au delà l'imprécision occasionnée par les conditions aux limites est plus faible que l'erreur expérimentale.

Ce modèle représente assez mal les courbes expérimentales pour un écoulement dans une colonne à garnissage surtout pour la phase dispersée (cf. Figure 32). En effet, ce modèle suppose une analogie avec la diffusion moléculaire, donc un mélange en retour que l'on n'observe pas pour la phase dispersée dans notre cas ; de plus, il ne tient pas compte de la texture de l'écoulement de phase dispersée en ne distinguant pas la rétention stationnaire de la rétention dynamique.

b) - Cellules parfaitement mélangées en série [L 7]

Une autre schématisation du mélange axial consiste à l'assimiler à l'effet d'une série de réacteurs parfaitement mélangés en cascade. Le paramètre de ce modèle est n , nombre de cellules en série, relié à la variance du pic (voir Tableau V).

Nous utiliserons ce modèle pour caractériser le mélange axial de la phase continue dans le calcul du nombre d'unités de transfert vrai (cf. 4.42).

3.13 - Modèles à plus d'un paramètre de mélange

Les modèles simples représentant mal le mélange axial expérimental, différents autres modèles ont été proposés.

a) - Modèle PE

Pour mieux représenter les courbes de réponses expérimentales, différents auteurs [H 4, H 5, V 6] ont fait intervenir un mécanisme d'échange de matière par diffusion moléculaire avec des zones stagnantes. Le modèle PE (écoulement piston avec échange avec des zones stagnantes) suppose un écoulement piston dans la partie dynamique de l'écoulement.

- TABLEAU V -

MODELES DE DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR A UN PARAMETRE

Modèle	Courbe de DTS	C (θ)	Détention x_T	Variance $\left(\frac{\sigma}{\bar{t}}\right)^2$
PD Fermé-Fermé	$1 - \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left[\left(\frac{Pe}{\theta} \right)^{1/2} (1 - \theta) \right] - \left(\frac{4 Pe \theta}{\pi} \right)^{1/2} \left[3 + \right.$ $+ 2 Pe (1 - \theta) \left. \right] \exp \left[- Pe \frac{(1 - \theta)^2}{\theta} \right] + \left[\frac{1}{2} + 2 Pe (3 + 4 \theta) + \right.$ $+ 4 Pe^2 (1 - \theta)^2 \left. \right] \exp (4 Pe) \operatorname{erfc} \left[\left(\frac{Pe}{\theta} \right)^{1/2} (1 - \theta) \right]$		$\frac{\bar{t} U_0}{\varepsilon L}$	$\frac{2}{Pe} - \frac{2}{Pe^2} (1 - e^{-Pe})$
PD Fermé-Ouvert	$\left(\frac{Pe}{\pi \theta} \right)^{1/2} \exp \left(- \frac{Pe (1 - \theta)^2}{4 \theta} \right) - \frac{Pe}{2} \exp (Pe) \times \operatorname{erfc} \left[\left(\frac{Pe}{\theta} \right)^{1/2} \frac{1 + \theta}{2} \right]$		$\frac{\bar{t} U_0}{\varepsilon L} \times \frac{Pe}{1 + Pe}$	$\frac{2}{Pe} + \frac{3}{Pe^2}$
PD Ouvert-Ouvert	$\frac{1}{2} \left(\frac{Pe}{\pi \theta} \right)^{1/2} \exp \left(- \frac{Pe (1 - \theta)^2}{4 \theta} \right)$		$\frac{\bar{t} U_0}{\varepsilon L} \times \frac{Pe}{2 + Pe}$	$\frac{2}{Pe} + \frac{8}{Pe^2}$
Mélangeurs en série	$\frac{n^n}{(n-1)!} \theta^{n-1} e^{-n\theta}$		$\frac{\bar{t} U_0}{\varepsilon L}$	$\frac{1}{n}$

Outre le temps de séjour moyen (ou la rétention totale), ce modèle a deux paramètres :

- ψ le pourcentage de zone dynamique
- N le nombre d'unités de transfert caractérisant l'échange de matière entre zone dynamique et zone stagnante

Comme nous le verrons, ce modèle est équivalent au modèle statistique que nous présentons.

b) - Modèle PDE

Ce modèle [V 1, V 6] (écoulement piston avec dispersion axiale et échange de matière avec des zones stagnantes), tient compte en outre d'une diffusion longitudinale dans la partie dynamique. Il a un paramètre en plus : le nombre de Peclet caractérisant ce mélange axial.

En appliquant les modèles PE ou PDE, il est possible de déterminer la rétention "statique" qui participe à l'échange avec la fraction dynamique de la phase dispersée. Si un tel modèle paraît décrire assez bien le comportement d'un écoulement ruisselant, il semble moins satisfaisant pour l'écoulement en gouttes que nous observons en liquide-liquide.

Néanmoins, avec la collaboration de M. Sallaly [S 2], nous avons appliqué le modèle PDE à des résultats obtenus sur la phase dispersée dans une colonne de 5 cm de diamètre (co-courant liquide-liquide). Comme nos courbes expérimentales ont des fins de pic relativement rapides, nous avons déterminé les paramètres N et ψ à partir des deuxième et troisième moments qui sont obtenus dans ce cas de manière assez précise et nous avons déterminé le nombre de Peclet par optimisation.

Bien que ce modèle représente correctement les courbes expérimentales, les résultats (Figures 21 et 22) ne sont pas satisfaisants. En effet, la ré-

tention "statique" ainsi déterminée est beaucoup plus faible que la rétention stationnaire observée.

c) - Cellules parfaitement mélangées en série avec débits de retour

Ce modèle a été introduit par Miyauchi et Vermeulen [M 4] pour la dispersion axiale dans un appareil diphasique liquide-liquide à contre-courant. Ce modèle a non seulement un paramètre de mélange pour chaque phase (rapport du débit de retour au débit total), mais aussi un paramètre supplémentaire (le nombre de cellules en série). Il est particulièrement intéressant pour les appareils à étages (RDC) pour lesquels le nombre de cellules est assimilé au nombre d'étages réels.

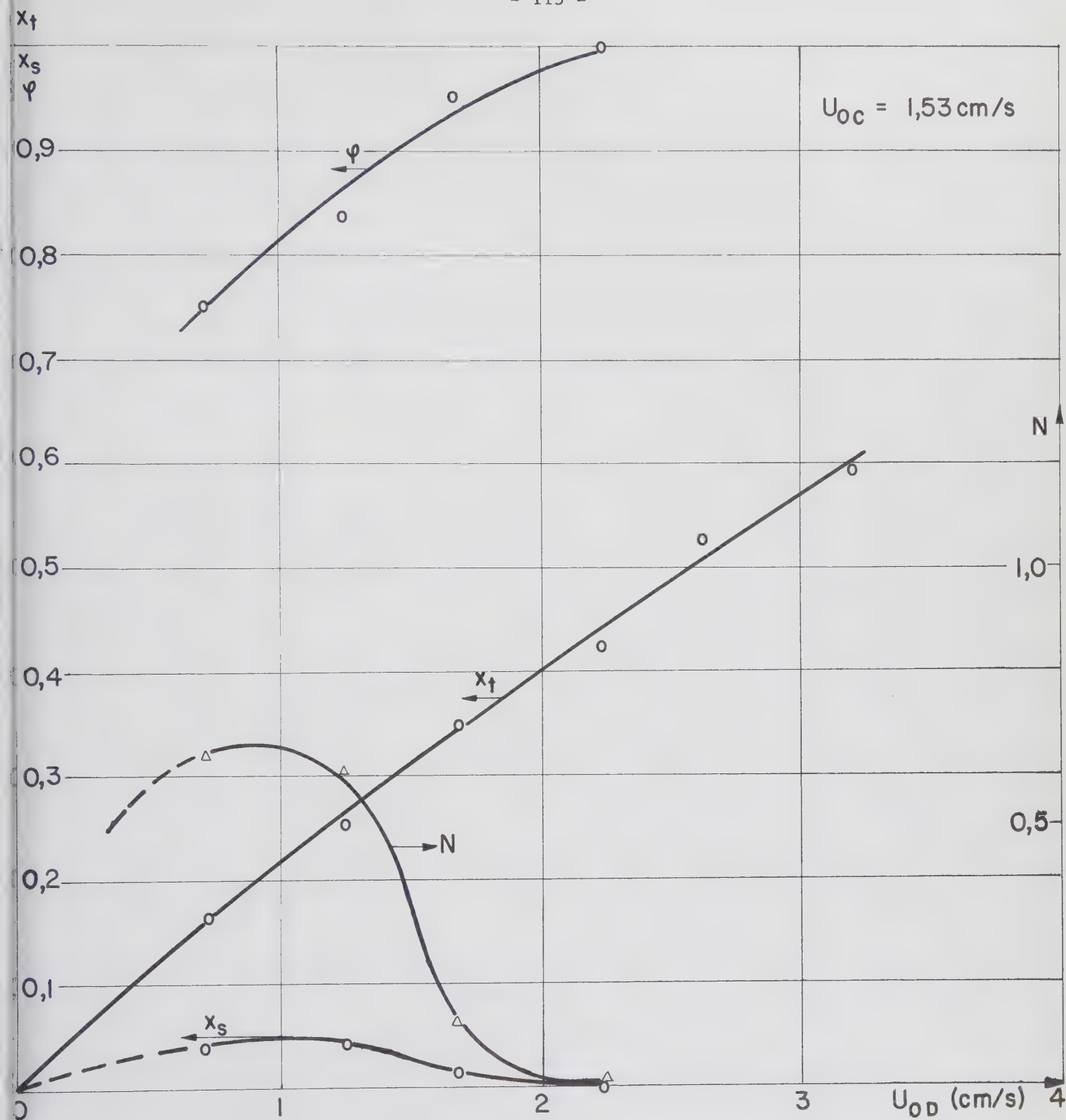
d) - Modèles combinés

Certains auteurs ont utilisé des modèles qui supposent un ensemble d'éléments. Chaque élément est composé de mélangeurs en série ou en parallèle, ayant chacun un volume et des propriétés de mélange particulières : écoulement piston, diffusion axiale, mélange parfait.

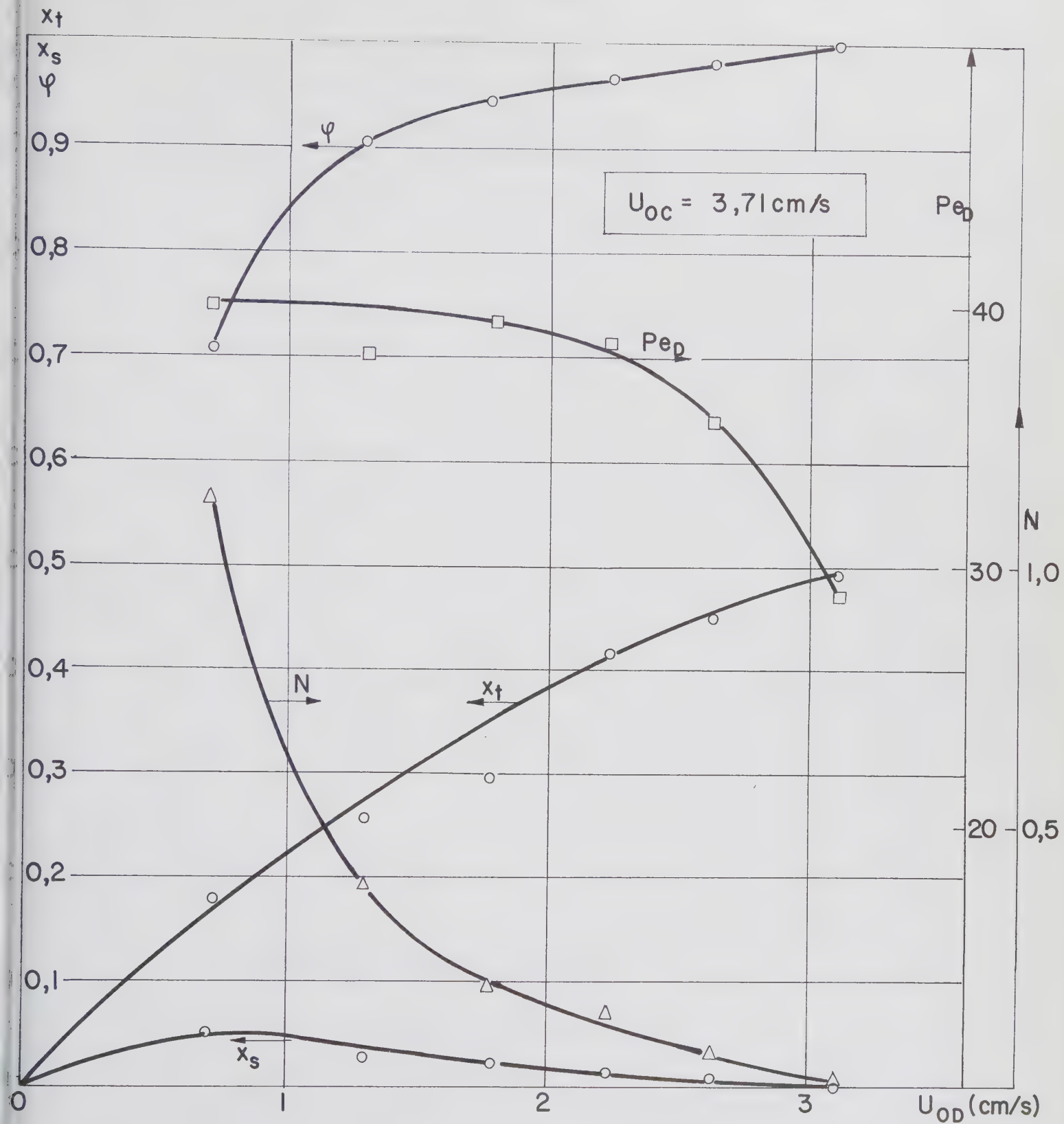
Citons le modèle de Van Swaaij et coll. [V 1] qui suppose deux réacteurs parfaitement mélangés en parallèle, l'un des deux représentant la rétention statique ; et celui de Hovorka [H 6] qui tient également compte de la rétention statique, mais qui avec 4 paramètres de mélange a l'inconvénient de pouvoir prédire n'importe quelles courbes, mêmes celles que l'on n'observe jamais (à plusieurs maxima).

3.14 - Modèles statistiques

Des modèles statistiques ont été proposés pour expliquer la distribution des temps de séjour dans les garnissages. Tout d'abord Jacques et coll. [J 1] et Cairns et Prausnitz [C 1] ont proposé un modèle où la distribution des temps de séjour est expliquée par des arrêts et départs aléatoires des paquets fluides. Ces auteurs se ramènent ensuite au modèle diffusionnel et déterminent des nombres de Peclet.



- FIGURE 21 -
 RESULTATS AVEC LE MODELE PDE
 (COLONNE 5 CM)



- FIGURE 22 -
 RESULTATS AVEC LE MODELE PDE
 (COLONNE DE 5 CM)

D'autre part, Buffham et coll. [B 2, B 3] pour les écoulements dans les garnissages et Giddings [G 4] pour la chromatographie, ont étudié un modèle analogue à celui que nous présentons au paragraphe 3.3. Les premiers ont considéré [B 3] soit des temps d'arrêt fixes, soit des temps d'arrêt obéissant à une distribution de Poisson, soit enfin [B 2] une généralisation de ces deux cas particuliers suivant laquelle les temps d'arrêt obéissent à une loi $\Gamma(n)$.

On peut montrer (voir annexe B) que les modèles de Giddings, de Buffham et coll. et celui que nous présentons sont équivalents du point de vue formel, au modèle PE présenté dans les références [H 4, H 5, V 6]. Par contre, les paramètres utilisés et surtout leurs significations physiques sont très différents. On trouvera dans le Tableau VI les principales correspondances entre les modèles, PD, PE, PDE et le modèle statistique SM que nous allons étudier. Les calculs correspondants se trouvent dans l'annexe B.

Ce rapide examen des modèles de distribution des temps de séjour montre qu'aucun ne tient compte de la rétention stationnaire que nous avons définie au chapitre II. Certains (PE, PDE), par contre, utilisent la rétention statique que l'on observe pour les écoulements ruisselant de liquide sur un garnissage en présence de gaz. Cette fraction de phase dispersée est assez faible et n'a pas la même texture que dans notre cas.

3.2 - MESURES

3.21 - Mélange axial en phase dispersée

a) - Techniques de mesures

La phase dispersée étant aqueuse, le traceur utilisé est une solution de chlorure de sodium à 20 %. L'injection d'une dizaine de millilitres

COMPARAISON ENTRE LES MODELES

Modèle	Paramètres	x_t	$\bar{t}$ (s)	$\left(\frac{\sigma}{\bar{t}}\right)^2$	x_s	Relations entre les paramètres
SM	t_m, h_a, h_d	$t_m \left(\frac{h_a + h_d}{h_d} \right) \frac{1}{\tau}$	$t_m + \frac{h_a}{h_d} t_m$	$\frac{2 h_a}{t_m (h_a + h_d)^2}$	$x_t \left(\frac{h_a}{h_a + h_d} \right)$	$N = h_a t_m$
PE	$\bar{t}, \varphi, N$	$\frac{\bar{t}}{\tau}$	$\bar{t}$	$\frac{2 (1 - \varphi)^2}{N}$	$x_t (1 - \varphi)$	$\varphi = \frac{h_d}{h_a + h_d}$
PD Fermé-Fermé	$\bar{t}, Pe$	$\frac{\bar{t}}{\tau}$	$\bar{t}$	$\frac{2}{Pe} + \frac{2}{Pe^2} (1 - e^{-Pe})$	0	
PDE Fermé-Ouvert	$\bar{t}, Pe, \varphi, N$	$\frac{\bar{t}/\tau}{1 + \frac{1}{Pe}}$	$\bar{t}$	$\frac{2}{Pe} + \frac{3}{Pe^2} + \frac{2 (1 - \varphi)^2}{N} \left(1 + \frac{1}{Pe} \right)$	$x_t (1 - \varphi)$	

SM : Modèle statistique (cf. 3.3)

PE : Ecoulement piston avec échange

PD : Ecoulement piston avec dispersion axiale

PDE : Ecoulement piston avec dispersion axiale et échange

de traceur est effectuée le plus près possible du distributeur à l'extérieur de la colonne (cf. Figure 1) par l'intermédiaire d'un ballon sous pression et d'une vanne électromagnétique. La présence du distributeur a pour effet de répartir le traceur sur la section d'entrée. Le temps de retard que passe le traceur dans la conduite d'arrivée d'eau a été calculé et pris en considération. L'écoulement a été supposé sans mélange axial, en effet la variance correspondant au passage dans le distributeur est très faible même si on suppose un mélange parfait devant la variance due au garnissage.

La prise d'échantillon s'effectue au moyen d'un petit entonnoir très plat (de faible volume) schématisé sur la Figure 23. Quand la colonne est en fonctionnement, aucun entraînement de phase légère n'a été observé. Le débit dans ce dispositif (environ 4 l/h) est très régulier. Ceci est dû à la forte perte de charge dans le tube capillaire en acier inox (1 mm de diamètre intérieur) qui amène l'échantillon de l'entonnoir à la cellule du conductimètre. Le prélèvement est analysé en continu au moyen d'un conductimètre "Taccusel" relié à un enregistreur "Sefram" (Servotrace).

Nous avons vérifié que l'échantillon est bien représentatif de l'ensemble de l'écoulement. En effet, pour deux positions de l'entonnoir (au milieu et sur le bord de la colonne) dans la même section droite, les fluctuations du temps de séjour moyen et de la variance des différentes courbes de sortie sont inférieures à l'erreur de mesure (cf. Figure 5).

Pour obtenir la courbe de distribution des temps de séjour dans le garnissage, nous avons supposé un écoulement piston entre la fin du garnissage et la cellule de mesure. Le mélange axial dans ce dispositif a été mesuré pour chaque expérience en injectant à l'entrée de l'entonnoir une petite quantité de traceur au moyen du tube capillaire schématisé sur la Figure 23. La variance correspondante ne dépasse jamais 5 % de la variance due au garnissage et nous l'avons négligée ; par contre, on a tenu compte du temps de retard correspondant à ce dispositif. Chaque mesure a été effectuée de 2 à 6 fois.

b) - Résultats

Les résultats obtenus sur la colonne de 15 cm sont représentés en terme de nombre de Peclet pour la longueur du garnissage $L = 175$ cm. Les résultats présentés sur la Figure 24 ont été obtenus par optimisation avec le modèle diffusionnel pour un réacteur fermé-ouvert. Les points portés sur la courbe sont des moyennes.

On voit que le mélange axial de la phase dispersée n'est pas influencé de manière significative par le débit de la phase continue. Par contre, la dispersion axiale diminue notablement quand le débit d'eau (phase dispersée) augmente. Cette constatation est illustrée sur la Figure 25 où on a porté pour un même débit d'isooctane quatre courbes expérimentales de distribution des temps de séjour.

3.22 - Mélange axial en phase continue

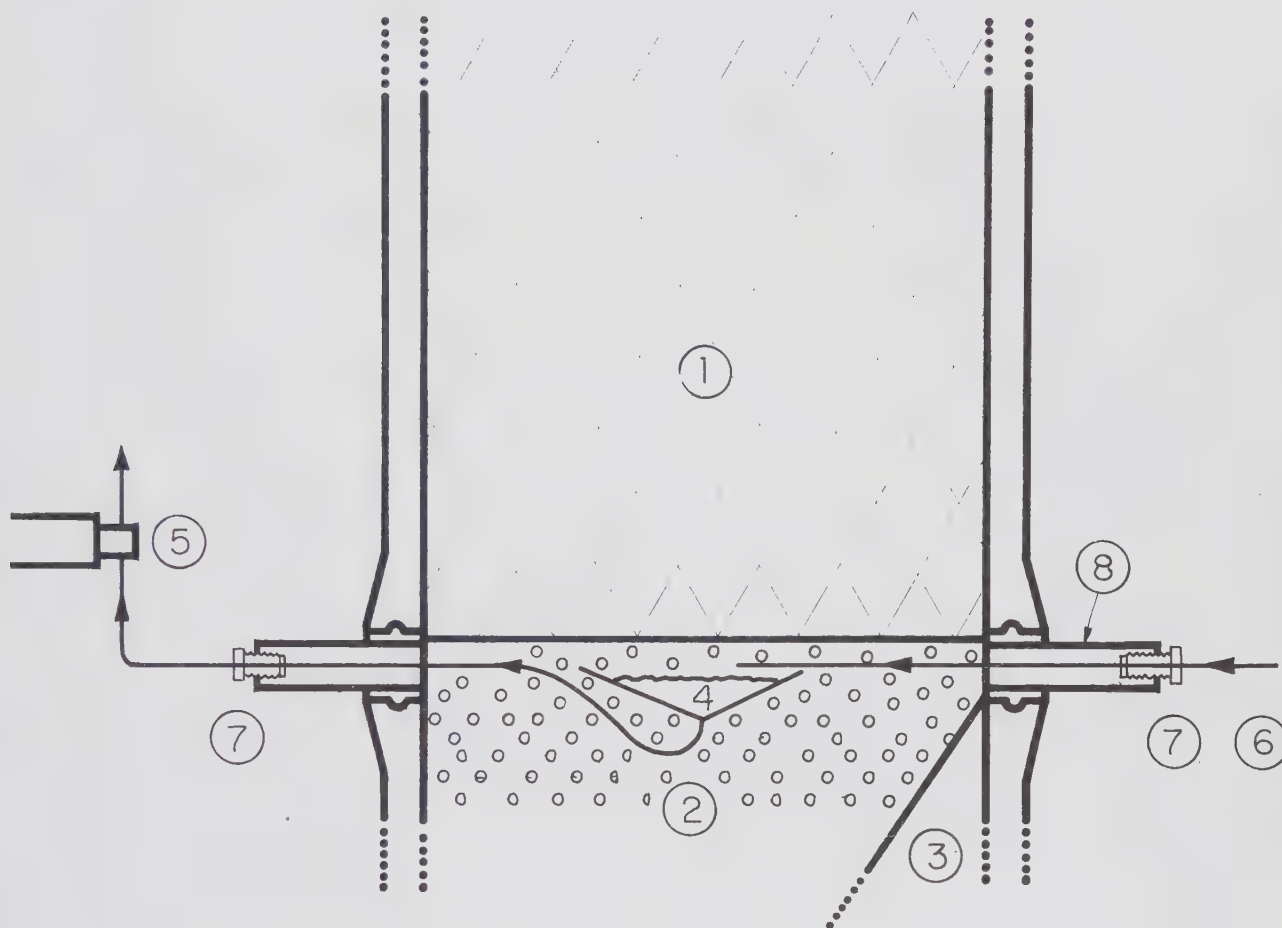
a) - Techniques de mesures

Dans notre appareil (cf. Figure 1) la phase continue (isooctane) est recyclée sans passer par un bac intermédiaire. Cette disposition est nécessitée par les grands débits utilisés et elle sera utile pour mesurer l'efficacité (cf. 4.2). Mais elle amène deux difficultés pour la mesure du mélange axial en phase continue :

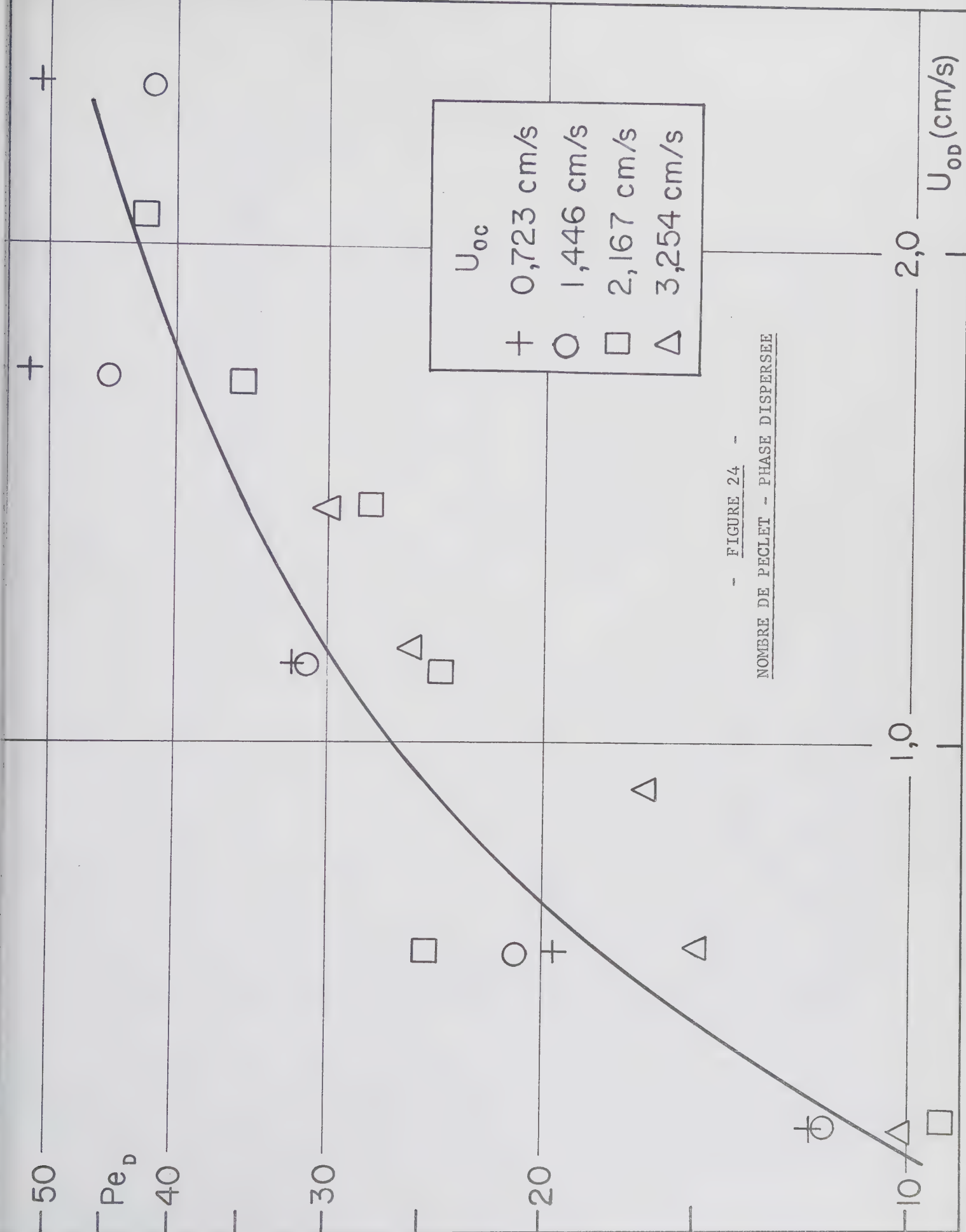
- il faut que le pic de distribution des temps de séjour soit entièrement sorti avant que le pic de recyclage ne commence.
- la concentration moyenne en traceur dans la phase continue doit rester entre deux limites. En effet, le photomètre UV ne détecte le traceur qu'à partir d'un certain seuil de concentration et il est très vite saturé (cf. annexe A).

- FIGURE 23 -

ECHANTILLONNAGE DE LA PHASE DISPERSEE



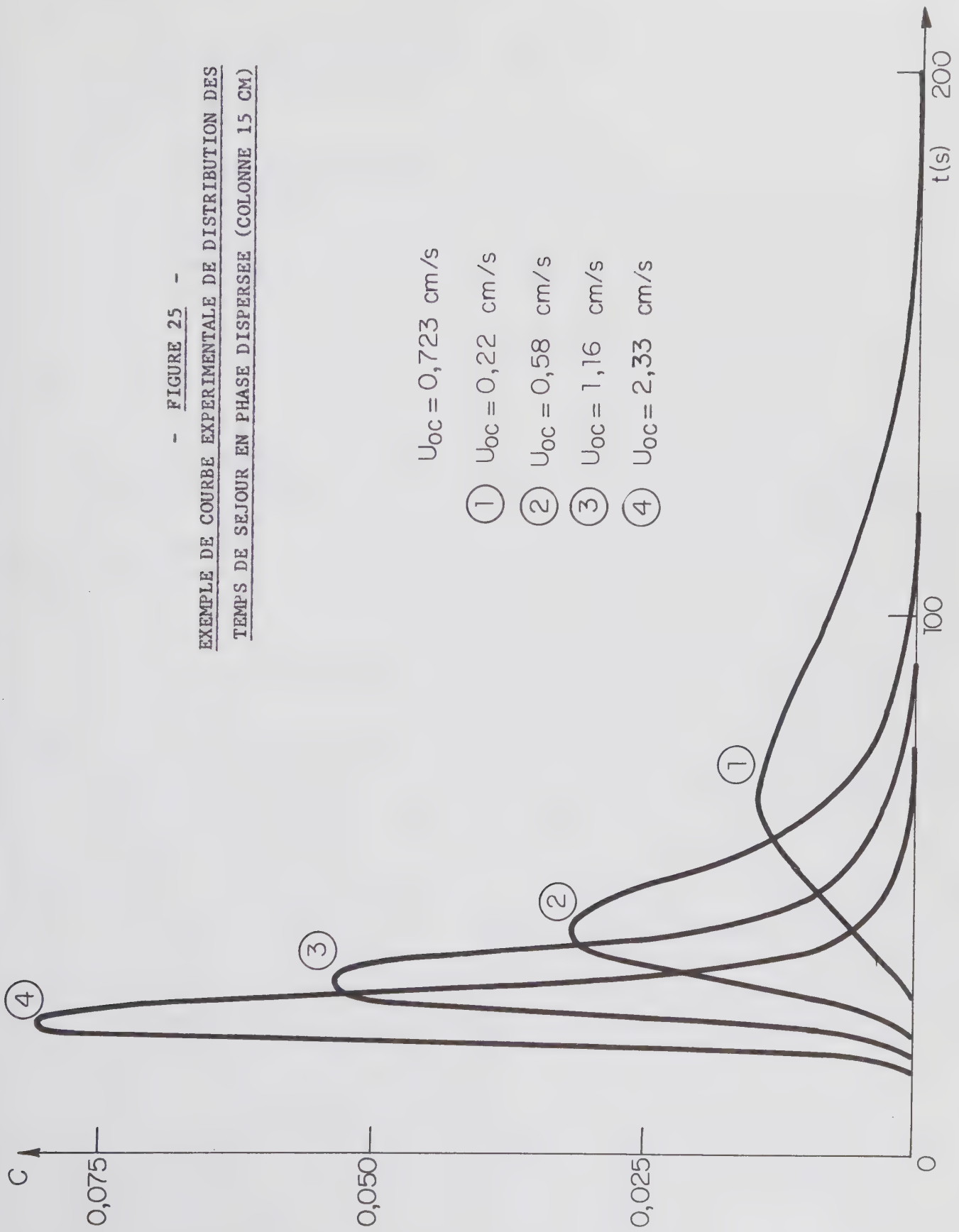
- 1 - Garnissage
- 2 - Décanteur
- 3 - Baffle de décantation
- 4 - Entonnoir de prise d'échantillon dans sa position centrale
- 5 - Cellule du conductimètre
- 6 - Introduction du traceur dans le dispositif de mesure
- 7 - Presse-étoupe
- 8 - Bride



- FIGURE 24 -
NOMBRE DE PECLET - PHASE DISPERSEE

- FIGURE 25 -

EXEMPLE DE COURBE EXPERIMENTALE DE DISTRIBUTION DES
TEMPS DE SEJOUR EN PHASE DISPERSEE (COLONNE 15 CM)



L'appareil de mesure est un photomètre UV en continu (Uvicord II) ayant son maximum de détection à 245 m μ (cf. annexe A). Il faut donc que le traceur :

- ait une bande d'absorption vers 245 m μ
- ait une absorption linéaire sur la plus grande échelle de concentration possible
- puisse être facilement extrait de l'isooctane

Nous avons choisi la méthyl-isobutyl-cétone qui absorbe dans la bonne gamme de longueur d'onde. Cette cétone est peu soluble dans l'eau. Durant son premier passage dans le garnissage, elle se comporte pratiquement comme un traceur non transférable, en effet, les bilans de traceur sont vérifiés (Figure 26). Mais comme l'isooctane est recyclé, entre chaque injection de traceur, la concentration en MIBK dans la phase continue s'homogénéise et diminue et on peut à nouveau faire une mesure. De plus, la concentration reste toujours supérieure au seuil de détection du photomètre.

L'étalement du pic de sortie a toujours été suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas d'interférence avec le pic de recyclage.

L'introduction (50 à 100 ml) est faite au moyen d'un tube capillaire qui débouche au sommet du garnissage (cf. Figure 1) par l'intermédiaire d'un flacon sous pression et d'une électrovanne.

La prise d'échantillon est schématisée sur la Figure 27, elle est constituée d'un capillaire, occupant un rayon de la section droite de la colonne, percé de 4 trous opposés au sens de l'écoulement. Pour éviter que des gouttes d'eau passent dans ce dispositif et ne faussent la détection de l'appareil UV, on a installé un micro-décanteur.

b) - Résultats

Pour la mesure de la rétention, la comparaison avec les valeurs obtenues à partir de la phase dispersée a déjà été faite (cf. Figure 6).

Les coefficients de mélange axial sont représentés en terme de nombre de Peclet pour la longueur du garnissage $L = 175$ cm. Le nombre de Peclet est obtenu par optimisation entre la courbe expérimentale et la courbe calculée avec le modèle PD ouvert-ouvert. Les points portés sur la Figure 28 sont les moyennes des différents résultats obtenus. A titre d'exemple, on a porté sur la Figure 29 les points obtenus pour un débit particulier d'isooctane.

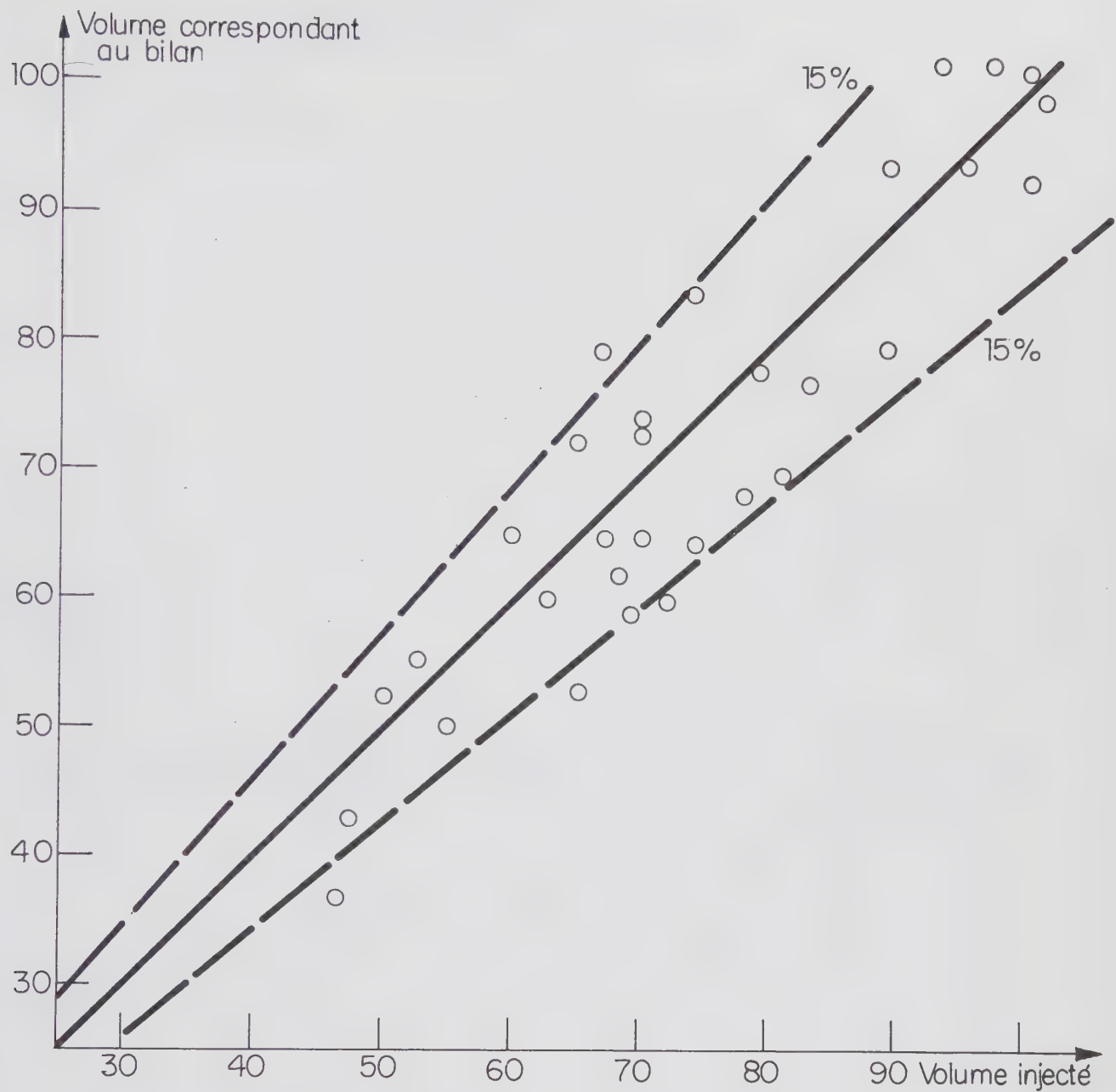
On constate que le mélange axial de la phase continue augmente avec la vitesse de la phase continue pour tendre vers une limite et diminue quand le débit de phase dispersée augmente.

Il est intéressant de souligner que la vitesse de phase dispersée a des effets inverses sur les deux nombres de Peclet. Le nombre de Peclet de la phase dispersée augmente avec la vitesse de cette phase, alors que celui de la phase continue diminue. Ceci entraîne :

- que les deux nombres de Peclet sont souvent du même ordre de grandeur en fonction des débits (Pe_c varie de 25 à 100 et Pe_D de 10 à 50 pour les débits étudiés).
- que, selon les cas, c'est l'une ou l'autre des phases qui est la plus mélangée.

3.3 - MODELE STATISTIQUE

L'exposé de ce modèle et son application a fait l'objet d'une publication [R 4].

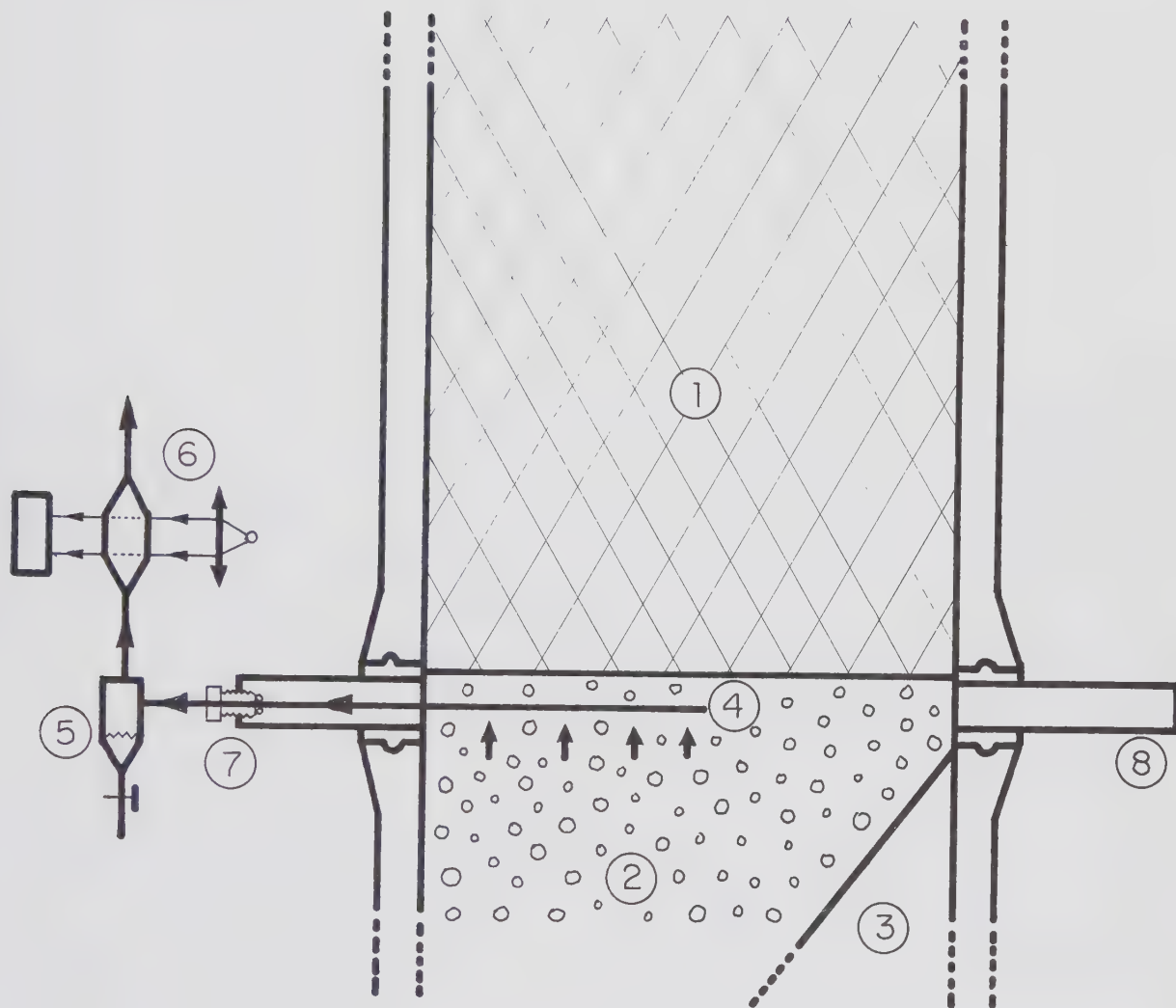


- TABLEAU 26 -

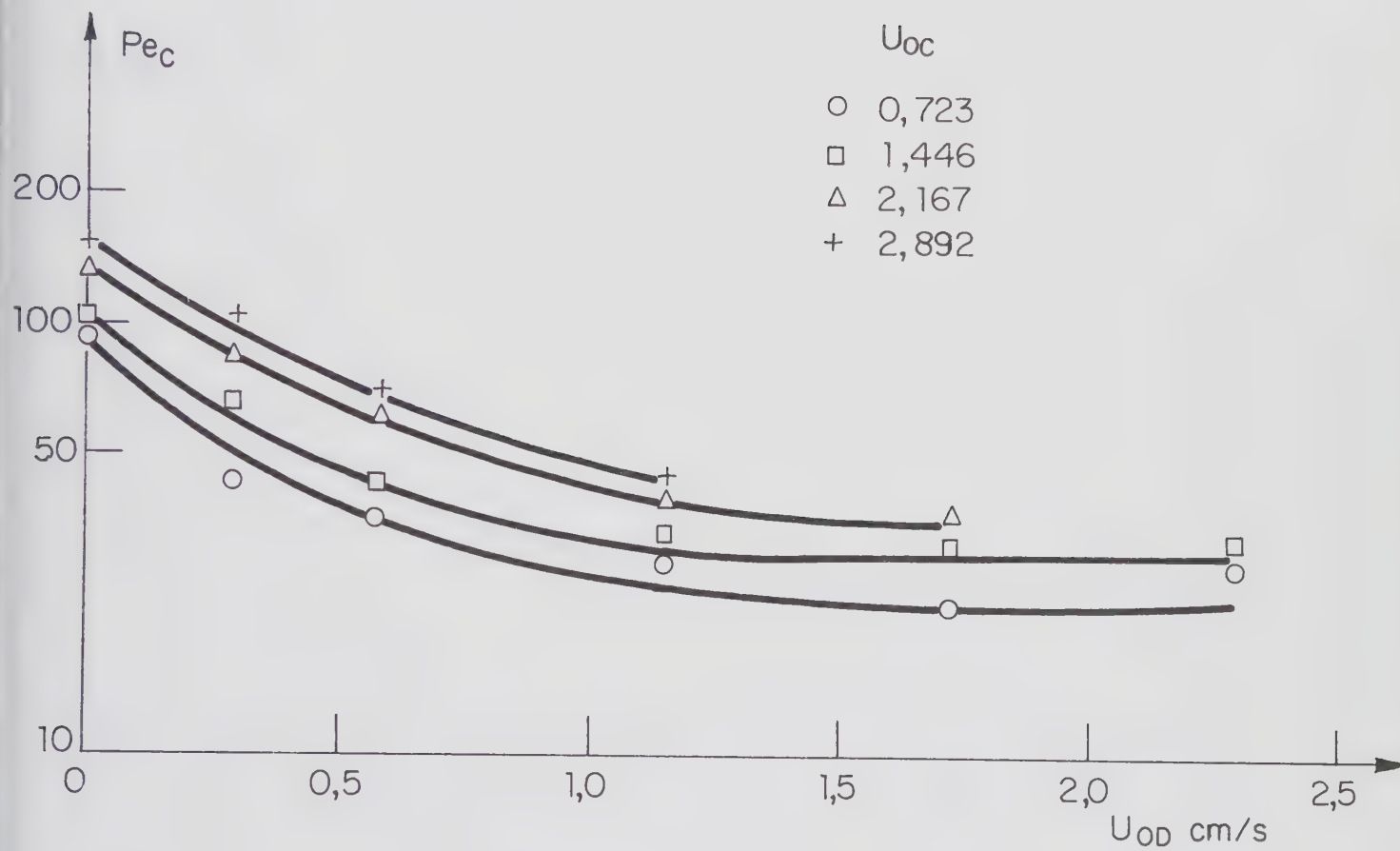
BILAN DES INJECTIONS DE MIBK DANS L'ISOOCTANE

- FIGURE 27 -

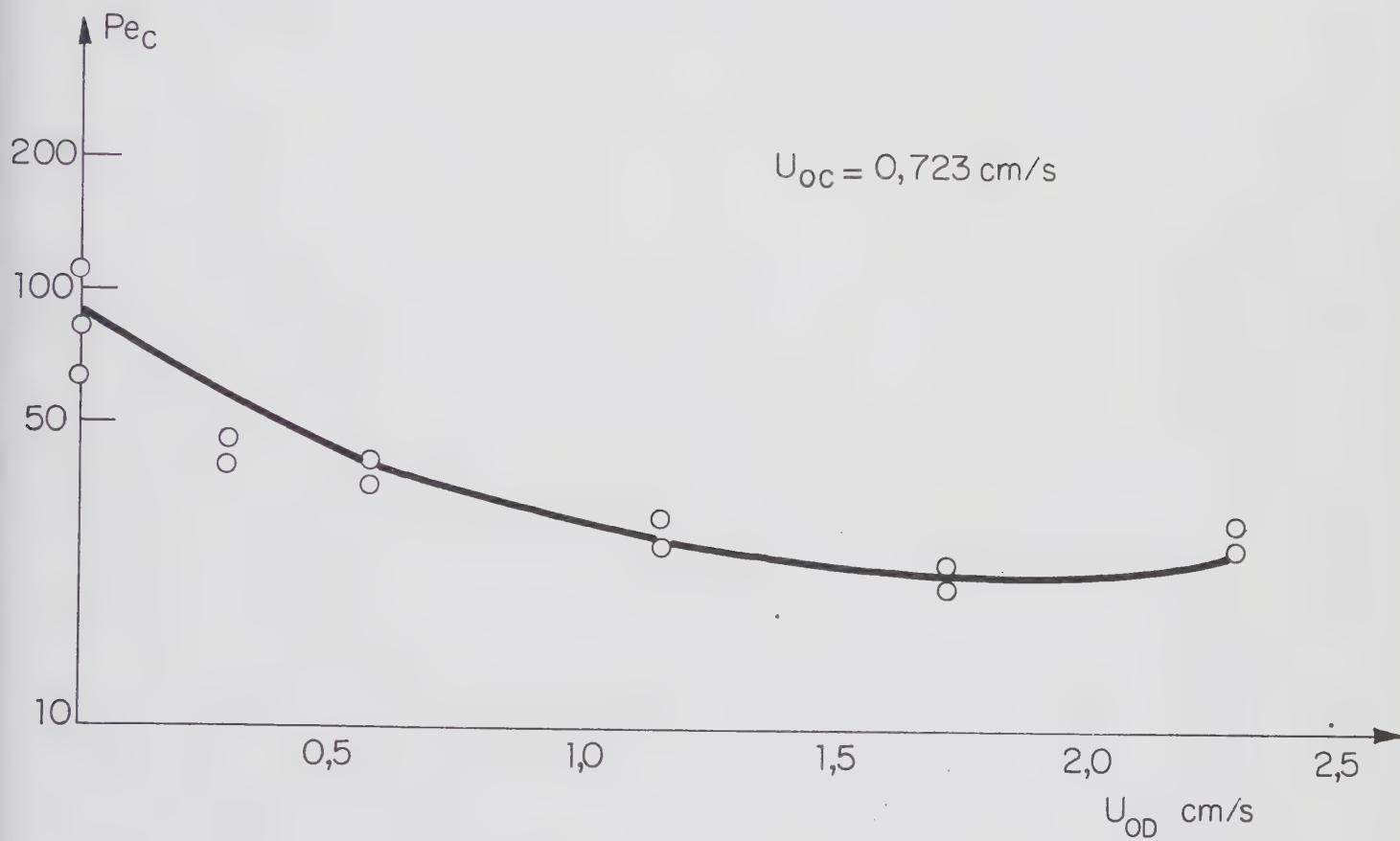
ECHANTILLONNAGE DE LA PHASE CONTINUE



- 1 - Garnissage
- 2 - Décanteur
- 3 - Baffle de décantation
- 4 - Prise d'échantillon de phase continue
- 5 - Micro décanteur (volume 1 ml)
- 6 - Cellule du photomètre UV
- 7 - Presse étoupe
- 8 - Bride



- FIGURE 28 -
NOMBRES DE PECLET - PHASE CONTINUE
(COLONNE 15 CM)



- FIGURE 29 -

NOMBRES DE PECLLET - PHASE CONTINUE

$U_{OC} = 0,723 \text{ CM/S}$

3.31 - Introduction

A la suite des observations réalisées (cf. 1.3 et 2.23), on admet que la distribution des temps de séjour est due exclusivement au fait que les gouttes s'arrêtent de manière aléatoire pour repartir après un temps d'arrêt variable et que le temps de séjour en phase mobile est constant (toutes les gouttes ont la même vitesse). Outre cette hypothèse, on admet que lorsqu'une goutte à l'arrêt est chassée par une autre goutte, elle repart aussitôt sans se mélanger avec la goutte qui prend sa place.

Le cheminement d'une goutte dans l'appareil peut être schématisé comme suit :



3.32 - Définitions des grandeurs moyennes

a) - Temps de séjour d'une goutte individuelle

Nous considérerons une goutte individuelle comme une entité indépendante, qui se déplace par bonds successifs séparés par des arrêts, sans se mélanger aux gouttes voisines.

Nous appellerons t_s le temps total que la goutte aura passé à l'état "arrêté" et t_m le temps total qu'elle aura passé à l'état "mobile". Le temps de séjour t de la goutte dans l'appareil est :

$$t = t_s + t_m \quad (\text{III-3})$$

b) - Valeurs moyennes pour une goutte

Supposons que cette goutte se soit arrêtée r fois. Le temps total d'arrêt t_s est composé de r arrêts successifs de durées variées. Nous définirons la durée moyenne de chaque arrêt élémentaire par la relation :

$$\Delta t_s = \frac{t_s}{r} \quad (\text{III-4})$$

De la même manière, la durée moyenne de chaque parcours élémentaire est :

$$\Delta t_m = \frac{t_m}{r} \quad (\text{III-5})$$

Nous supposerons que la goutte se déplace à vitesse constante v . La longueur moyenne du parcours élémentaire de cette goutte est :

$$\Delta L = v \Delta t_m = \frac{v t_m}{r} \quad (\text{III-6})$$

$$\text{avec } v = \frac{U_o}{\epsilon x_d} \quad (\text{III-7})$$

c) - Valeurs moyennes pour toutes les gouttes

Considérons maintenant l'ensemble des gouttes. Nous supposons que toutes ces gouttes se déplacent à la même vitesse v , mais qu'elles subissent des nombres d'arrêts variés (depuis zéro à plus l'infini). Nous ferons plus loin une hypothèse sur la loi de distribution des nombres d'arrêts r , autour de la valeur moyenne $\bar{r}$.

Il nous suffit ici de définir les valeurs moyennes, pour toutes les gouttes, des deux durées d'arrêt élémentaire et de parcours élémentaire, définies comme suit :

$$\overline{\Delta t_s} = \left(\frac{\bar{t_s}}{\bar{r}} \right) \approx \frac{\bar{t_s}}{\bar{r}} \quad (\text{III-8})$$

$$\overline{\Delta t_m} = \left(\frac{\bar{t_m}}{\bar{r}} \right) \approx \frac{\bar{t_m}}{\bar{r}} \quad (\text{III-9})$$

Et nous introduisons le temps de séjour moyen (déterminé par la méthode des traceurs) :

$$\bar{t} = \bar{t_s} + \bar{t_m} \quad \text{avec} \quad \bar{t_m} = \frac{L}{v} \quad (\text{III-10})$$

d) - Relations avec les rétentions

En régime stationnaire et en adoptant le modèle décrit en 3.33, nous écrirons que les trois temps moyens précédents sont proportionnels aux trois rétentions correspondantes, soit :

- le temps d'arrêt moyen est proportionnel à la rétention statique
- le temps de parcours moyen est proportionnel à la rétention dynamique
- le temps de séjour moyen est proportionnel à la rétention totale

soit :

$$\frac{x_s}{\bar{t}_s} = \frac{x_D}{\bar{t}_m} = \frac{x_T}{\bar{t}} \quad (\text{III-11})$$

3.33 - Lois de distribution

a) - Fréquences d'arrêt et de départ

Introduisant, pour la commodité des calculs, les inverses des deux durées élémentaires $\overline{\Delta t}_s$ et $\overline{\Delta t}_m$, soit :

$$h_a = \frac{1}{\overline{\Delta t}_m} \text{ et } h_d = \frac{1}{\overline{\Delta t}_s} \quad (\text{III-12})$$

h_a est la "fréquence" moyenne d'arrêt d'une goutte mobile

h_d est la "fréquence" moyenne de départ d'une goutte arrêtée

b) - Lois de distribution

Si la probabilité de départ d'une goutte est indépendante du temps passé à l'arrêt, la distribution des temps d'arrêt est donnée par une loi de Poisson.

Si la probabilité d'arrêt d'une goutte est indépendante du temps passé en mouvement, la distribution des temps de mouvement est également donnée par une loi de Poisson.

c) - Calcul de la distribution des temps de séjour

Selon ces lois, la probabilité ψ_r pour qu'une goutte s'arrête r fois est :

$$\psi_r = \frac{(h_a \bar{t}_m)^r}{r!} \exp (- h_a \bar{t}_m) \quad (\text{III-13})$$

Pour la probabilité dP_r pour que le r -ième départ ait lieu entre les temps t_s et $t_s + dt_s$ est :

$$dP_r = \frac{(h_d t_s)^{r-1}}{(r-1)!} \exp(-h_d t_s) \cdot h_d dt_s \quad (\text{III-14})$$

La probabilité pour que la goutte sorte de l'appareil entre les instants t et $t + dt$ est :

$$dP = \sum_{r=1}^{\infty} \psi_r dP_r \quad (\text{III-15})$$

La distribution des temps d'arrêt de la goutte est donc :

$$C(t_s) = \frac{dP}{dt_s} = \exp \left[- (h_a \bar{t}_m + h_d t_s) \right] \sum_{r=1}^{\infty} \frac{(h_a h_d \bar{t}_m)^r \cdot t_s^{r-1}}{r! (r-1)!} \quad (\text{III-16})$$

Ce résultat est basé sur l'hypothèse que toutes les gouttes se déplacent à la même vitesse v et donc que leurs temps de parcours t_m sont tous égaux à la valeur moyenne $\bar{t}_m$.

En remplaçant t_s par $t - t_m$, on obtient la distribution des temps de séjour. On peut résoudre l'équation (III-16) et on obtient en posant $X = \sqrt{4 h_a h_d \bar{t}_m t_s}$ la même équation de distribution que Giddings [G 4].

$$C(t_s) = \left(\frac{X}{2 t_s} \right) I_1(X) \exp(-h_d t_s - h_a t_m) + \exp(-h_a t_m) \cdot \delta(t_s) \quad (\text{III-17})$$

où $I_1(X)$ est la fonction de Bessel modifiée de première espèce et $\delta(t_s)$ la fonction de Dirac unité pour $t_s = 0$, c'est-à-dire $t = t_m$.

Pour obtenir la distribution des temps de séjour $C(t)$, on négligera le deuxième terme de l'expression (III-17), qui pour les résultats présentés est

toujours très faible (entre 0,1 et 0,5 %).

On obtient :

$$C(t) = \left(\frac{X}{2 t_s} \right) I_1(X) \exp(-h_d t_s - h_a t_m) \quad (\text{III-18})$$

avec $t_s = t - t_m$

Pour les rétentions on obtient avec (III-10), (III-11) et (III-12)

$$x_s = x_T \left(\frac{h_a}{h_a + h_d} \right) \quad (\text{III-19})$$

$$\text{et } x_T = \frac{t_m}{\tau} \left(\frac{h_a + h_d}{h_a} \right) \text{ avec } \tau = \frac{L \epsilon}{U_o} \quad (\text{III-20})$$

Ce modèle possède donc trois paramètres, h_a , h_d , t_m , la relation (III-20) reliant la rétention totale à ces trois paramètres, deux seulement caractérisent le mélange axial. Pour les applications, plutôt que d'utiliser les fréquences h_a , h_d , nous utiliserons des variables plus significatives.

- t_{am} temps d'arrêt moyen = $\overline{\Delta t_s} = 1/h_d$

- $\mathcal{L}$ libre parcours moyen = $\overline{\Delta t_m} \cdot v = v/h_a$

3.34 - Résultats

Nous avons appliqué ce modèle à l'écoulement de la phase dispersée dans la colonne de 15 cm de diamètre. Les courbes expérimentales, normées en concentration, ont été optimisées par minimisation de la somme des carrés des écarts entre les valeurs calculées par l'équation (III-18) et les valeurs expérimentales en choisissant une vingtaine de points par courbe.

La méthode d'optimisation est exposée dans l'annexe C. Dans le cas où le minimum n'est pas très prononcé, les valeurs obtenues des paramètres dépendent des valeurs initiales. Pour éviter cela, nous avons choisi comme première valeur de t_m le temps de départ du pic. L'optimisation à trois paramètres se trouve ainsi accélérée et la convergence est obtenue pour le minimum absolu.

La qualité de l'optimisation est illustrée par la Figure 30, sur laquelle on a porté la rétention totale obtenue par le modèle statistique en fonction de celle obtenue par le modèle PD. En effet (voir Tableau VI) au facteur $(1 + \frac{1}{Pe_D})$ près :

$$x_T = \frac{\bar{t}}{\tau} \approx \frac{t_m}{\tau} \left(\frac{h_a + h_d}{h_a} \right) \quad (\text{III-21})$$

Le calcul à partir du temps de séjour moyen et le calcul à partir de trois paramètres du modèle donnent sensiblement les mêmes résultats.

La Figure 31 montre les courbes expérimentales et calculées pour quatre débits de phase dispersée et pour un même débit de phase continue. La Figure 32 représente deux de ces expériences optimisées au moyen du modèle PD.

Sur la Figure 33, les paramètres de mélange (libre parcours moyen et temps d'arrêt moyen), ont été portés en fonction de la vitesse de phase dispersée. On remarque tout d'abord que le débit de la phase continue n'influence pas de manière significative la distribution des temps de séjour de la phase dispersée. C'est ce que nous avons déjà observé au paragraphe 3.21 (cf. Figure 24).

Le libre parcours moyen peut être considéré comme constant pour toute la gamme des débits étudiés, la valeur moyenne se situant aux environs de 28 cm. Le temps d'arrêt moyen diminue environ de 10 à 1 seconde quand le débit croît de 0,2 à 2,4 cm/s. Ce paramètre est donc celui qui influence directement

l'étalement du pic de sortie. Lorsque le débit augmente, le nombre de gouttes croît et une goutte à l'arrêt est chassée et remplacée par une goutte en mouvement de plus en plus vite, ce qui diminue le temps d'arrêt moyen.

Les valeurs absolues de ces deux paramètres sont parfaitement en accord avec les observations que l'on peut faire sur ce type de remplissage.

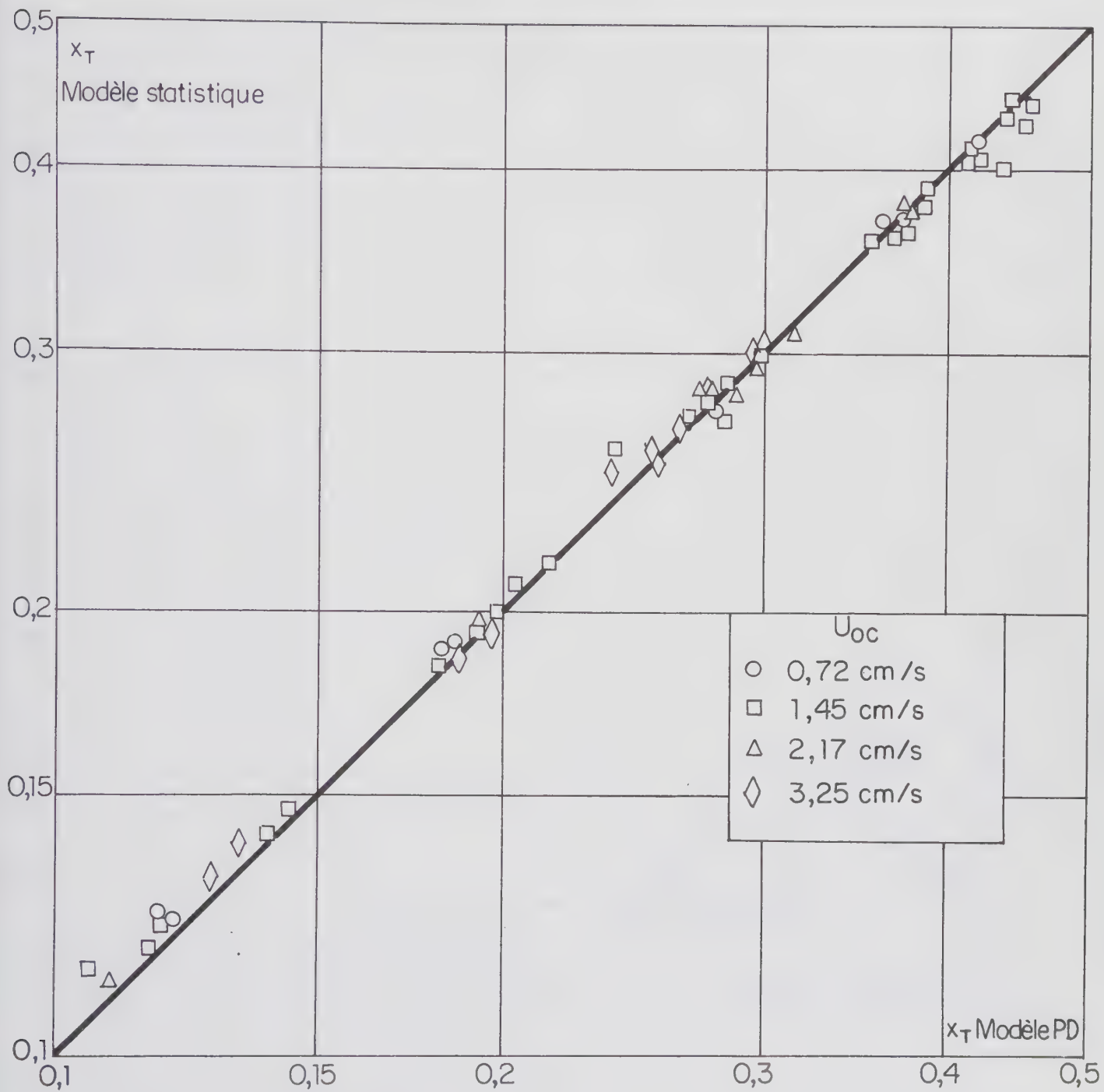
Une illustration des valeurs de rétentions stationnaires et totales est donnée sur la Figure 34 où ces quantités sont portées en fonction du débit d'eau pour deux débits d'isooctane. On voit que pour chaque point, les deux mesures donnent le même résultat. Aux faibles débits d'eau, la rétention stationnaire représente une part importante de la rétention totale, par contre quand le débit augmente, la proportion de la rétention stationnaire diminue.

L'intérêt de ce modèle est de présenter une signification physique assez précise pour les paramètres, en introduisant le libre parcours moyen et le temps d'arrêt moyen des gouttes de phase dispersée. Les valeurs obtenues par ajustement du modèle et des courbes de réponse expérimentales correspondent aux observations visuelles qui peuvent être faites.

Pour la détermination de la rétention stationnaire, les courbes obtenues (Figure 34) sont qualitativement les mêmes que celles obtenues par le modèle du pore stratifié (cf. 2.24 et Figure 14). Si on compare pour les mêmes expériences :

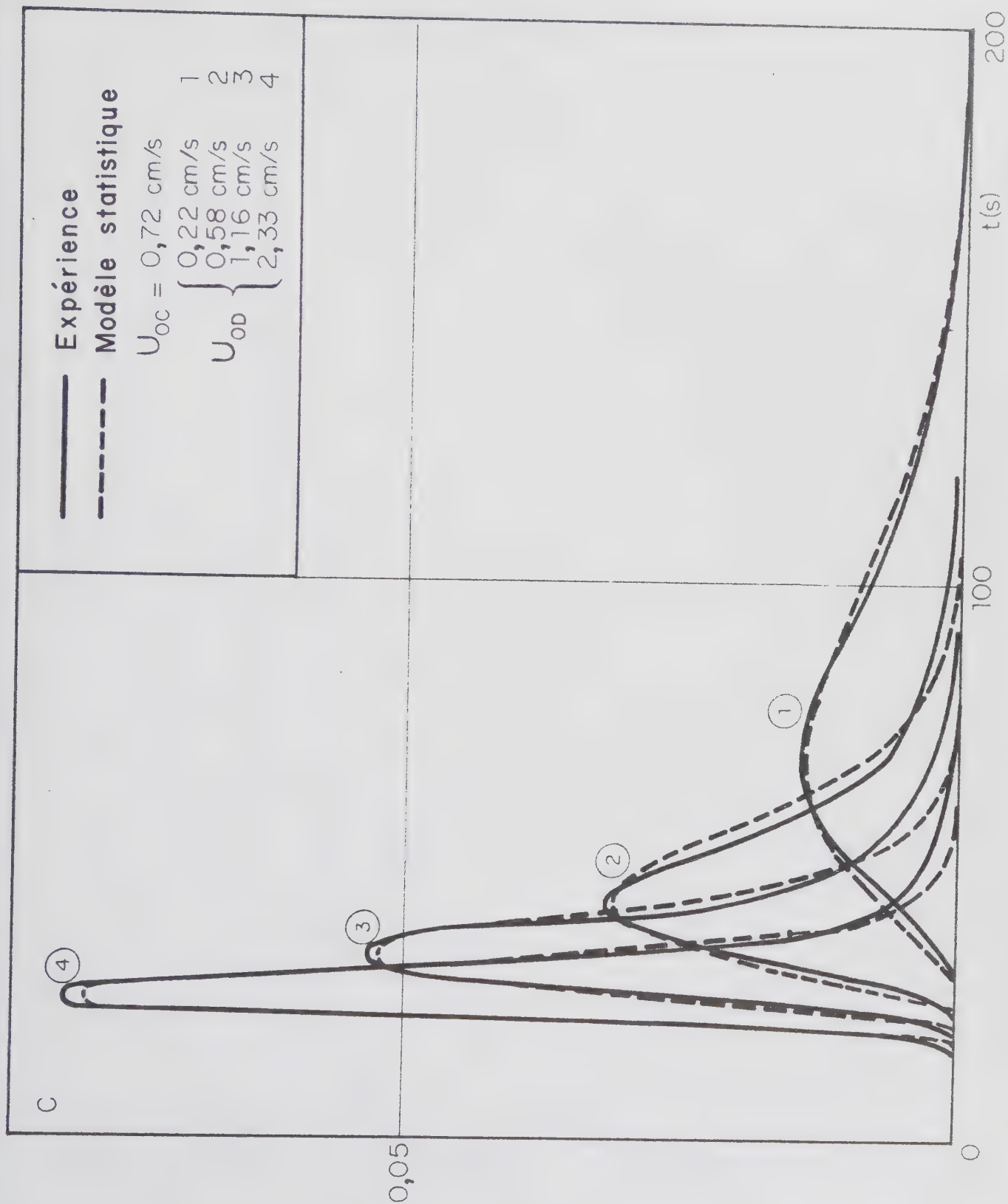
- l'estimation de x_s par différence entre la rétention totale expérimentale et la rétention dynamique calculée par le modèle du pore stratifié
- et le calcul de cette quantité par le modèle statistique

on obtient des résultats très voisins (Figure 35).



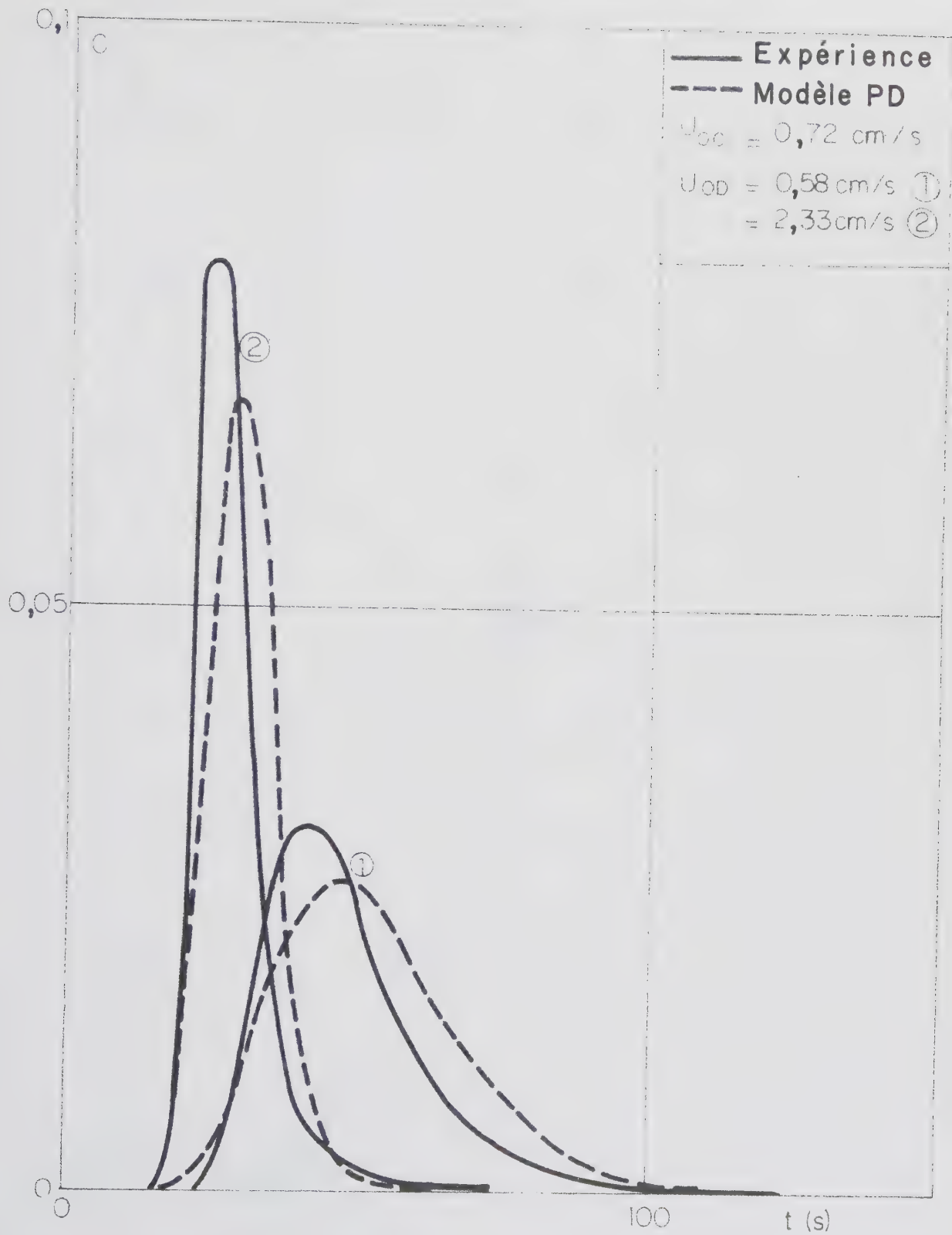
- FIGURE 30 -

RETENTION TOTALE OBTENUE SOIT PAR LE MODELE STATISTIQUE SOIT PAR LE MODELE PD



- FIGURE 31 -

OPTIMISATION AVEC LE MODELE STATISTIQUE



- FIGURE 32 -
OPTIMISATION AVEC LE MODELE PD

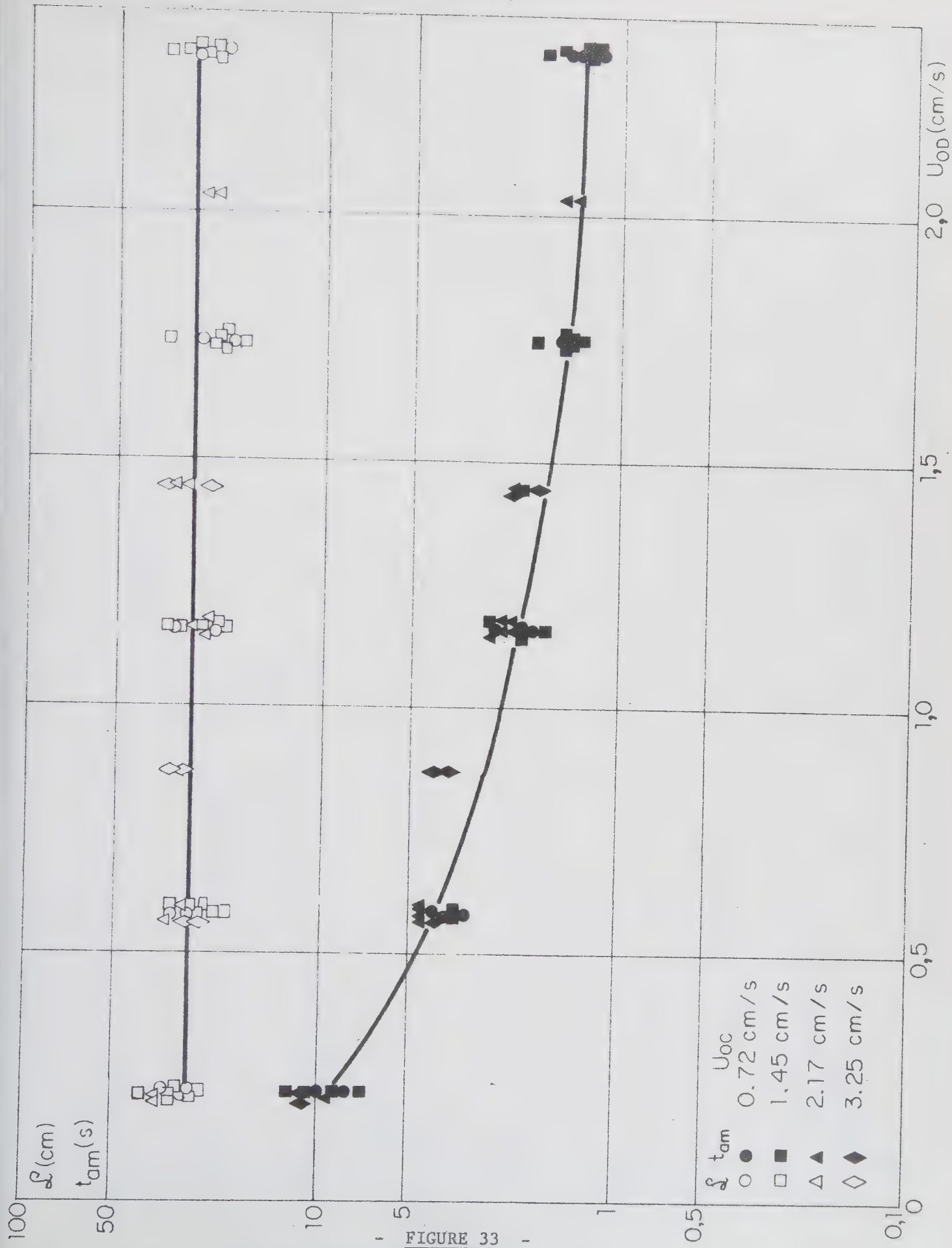


FIGURE 33

LIBRE PARCOURS MOYEN ET TEMPS D'ARRET MOYEN

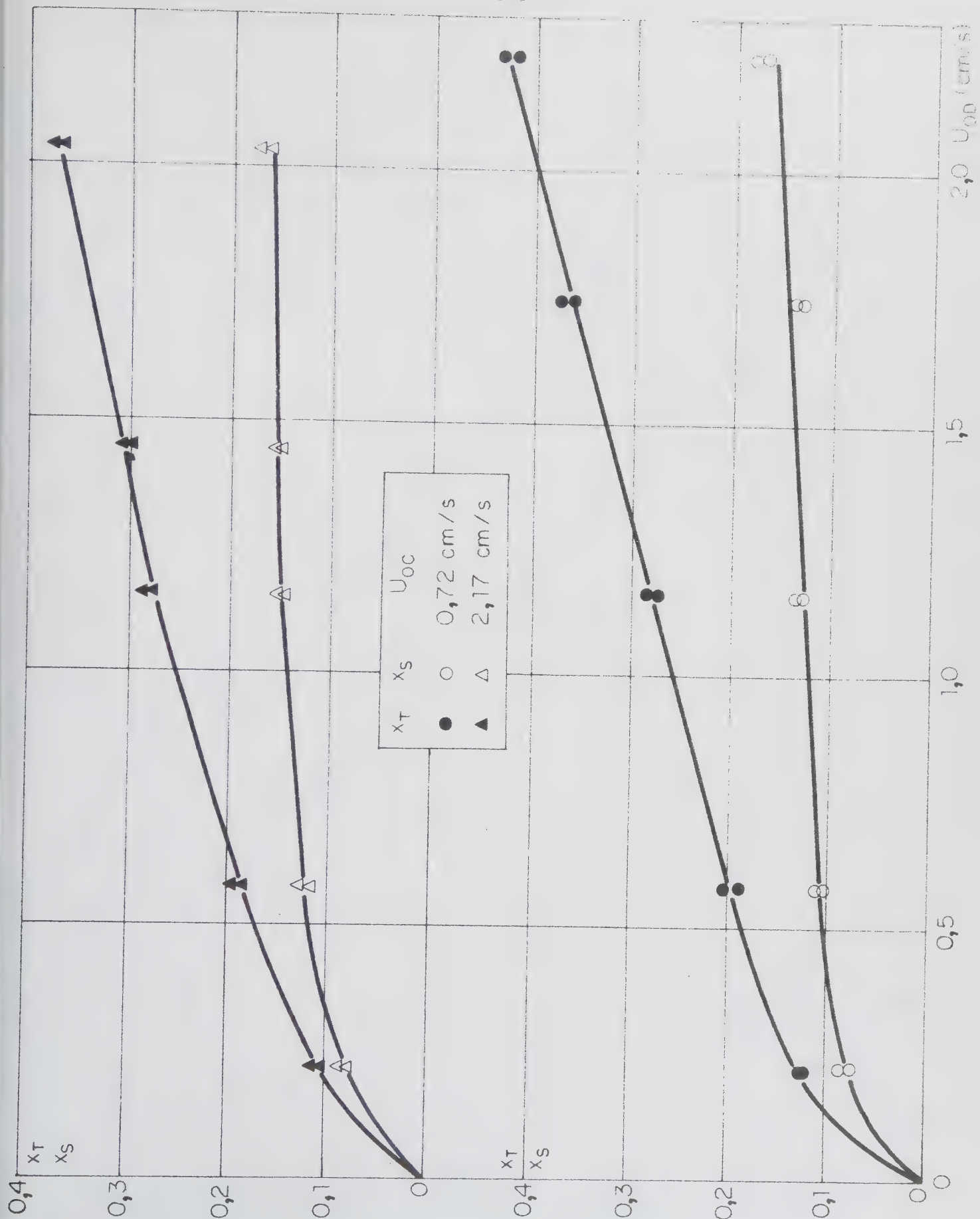
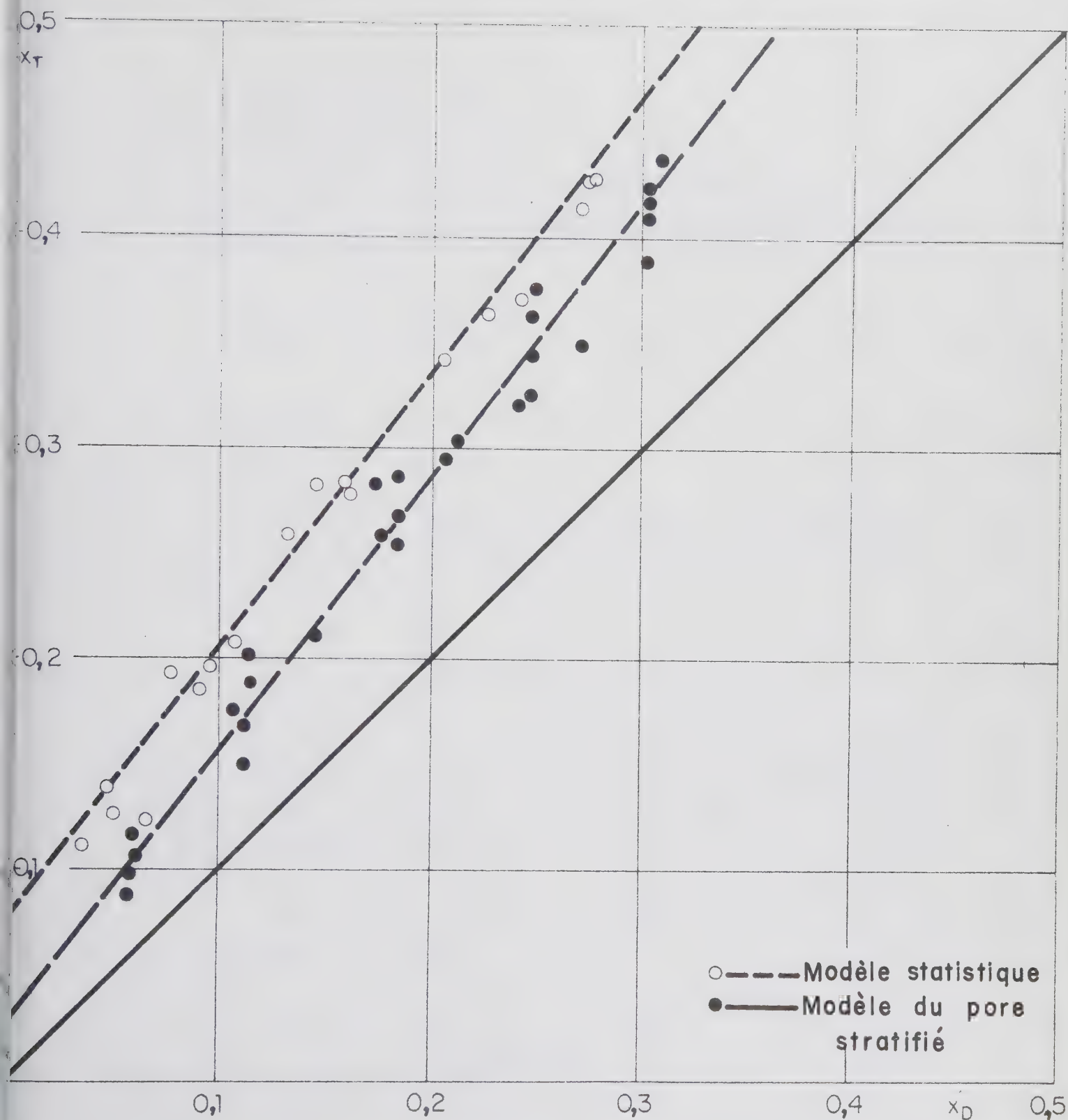


FIGURE 34

EXEMPLE DE RETENTION TOTALE ET STATIONNAIRE



- FIGURE 35 -

COMPARAISON DE L'ESTIMATION DE LA RETENTION STATIONNAIRE PAR LE MODELE
STATISTIQUE ET PAR LE MODELE DU PORE STRATIFIE

3.4 - COMPARAISON DES RESULTATS A CEUX DE LA LITTERATURE

3.41 - Ecoulement monophasique

Pour les écoulements monophasiques dans les garnissages, Levenspiel présente [L 7] la zone où se placent les résultats de la littérature sur un diagramme sur lequel on porte :

- en ordonnée $\frac{E}{U} \frac{\epsilon}{d_e}$ ou E est le coefficient de dispersion longitudinale et d_e le diamètre équivalent de Carman de la particule (cf. 2.12 a).
- en abscisse un nombre de Reynolds $\frac{d_e U \rho}{\mu}$ défini à partir du diamètre équivalent.

Nous avons reporté sur la Figure 36 une partie de ce diagramme pour les écoulements liquides et les points expérimentaux obtenus pour un écoulement monophasique d'isooctane.

3.42 - Ecoulement diphasique

A notre connaissance, aucune mesure de mélange axial n'a été effectuée pour un écoulement co-courant liquide-liquide dans un garnissage. Par contre, quelques études ont été faites à contre-courant [J 1, H 3, M 5] et Pavlica [P 1] a rassemblé les résultats.

Pour la phase dispersée, les données sont peu abondantes, un résultat assez imprécis est proposé :

$$\frac{Pe_D}{L} \frac{d_P}{P} = 0,5$$

où d_p est le diamètre nominal de la particule. Pour notre matériel $d_p = 1,5$ cm et $L = 175$ cm, ce qui donnerait Pe_D (contre-courant) ≈ 60 , ce qui se compare à nos résultats pour les débits importants (cf. Figure 24).

Pour la phase continue, Pavlica donne une corrélation entre les groupes :

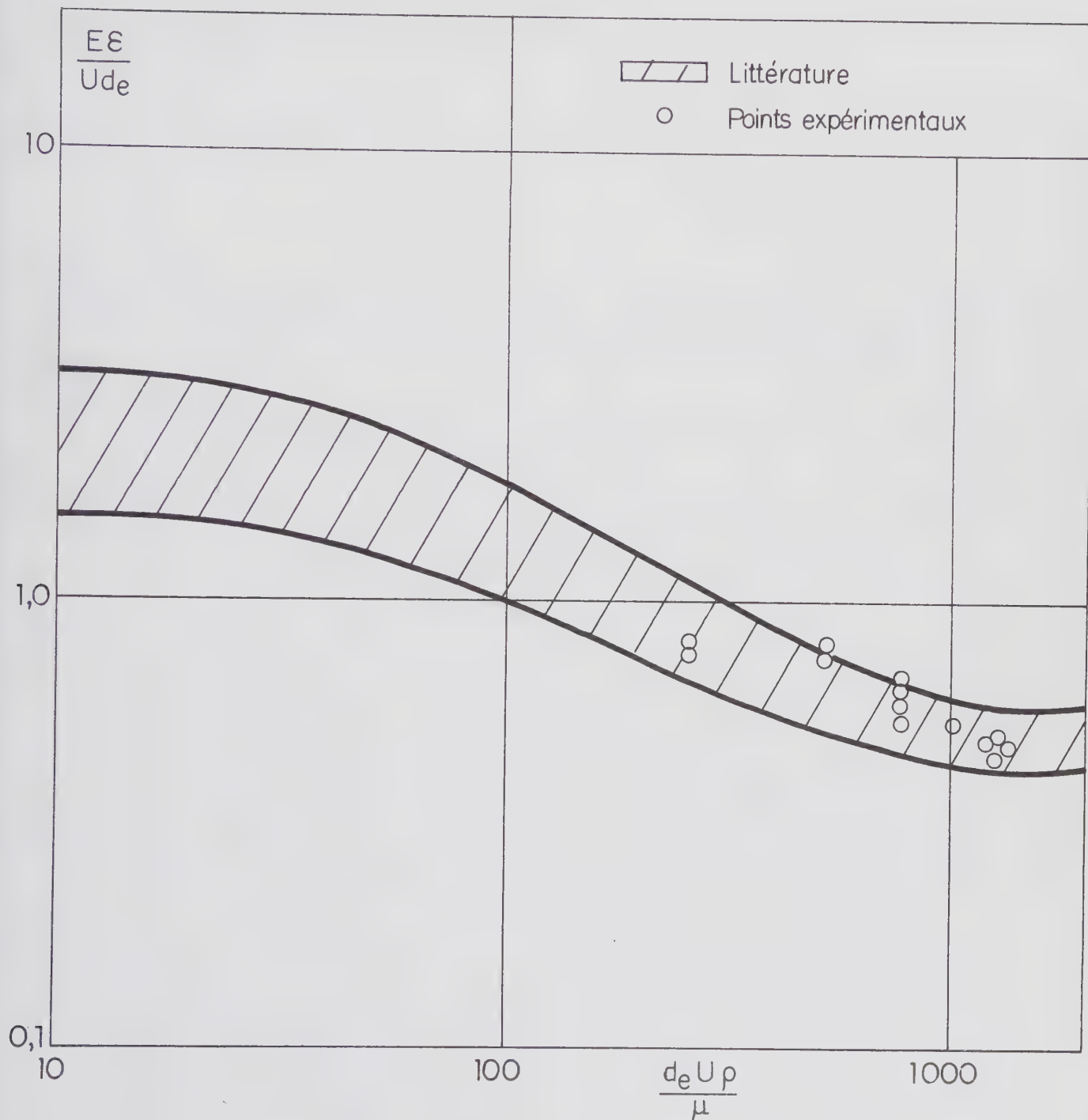
$$- \left(\frac{U_{oC}}{D} \frac{d_p}{\Psi} \right)^{1/2} \frac{U_{oC}}{U_{oD}} \text{ où } \Psi \text{ est la sphéricité de la particule de garnissage}$$

(cf. 2.12 a). Pour les anneaux Pall en polythène, $\Psi = 0,236$

$$- \text{ et } \frac{\epsilon Pe_c}{L/d_p}$$

Pour comparer le mélange axial obtenu à co ou à contre-courant, nous avons appliqué la corrélation pour un écoulement d'eau et d'isooctane dans des anneaux Pall en plastique et pour les plus faibles débits. En effet, la somme des vitesses (en colonne vide) que l'on peut obtenir à contre-courant avant l'engorgement ne dépasse guère 1 cm/s, c'est pour cette gamme de vitesse qu'a été établie la corrélation, mais pour des porosités beaucoup plus faibles que celles des anneaux Pall.

Le Tableau VII compare les résultats expérimentaux obtenus à co-courant avec ceux que l'on obtiendrait dans les mêmes conditions à contre-courant. Le mélange axial de la phase continue est donc relativement plus faible à co-courant, par contre, les variations du nombre de Peclet avec les débits se font dans le même sens.



- FIGURE 36 -

MELANGE AXIAL - ECOULEMENT MONOPHASIQUE

TABLEAU VII

COMPARAISON DES VALEURS EXPERIMENTALES DE Pe_c A CO-COURANT AVEC CELLES QUE L'ON
OBTIENDRAIT [P 1] DANS LES MEMES CONDITIONS A CONTRE-COURANT

U_{oc} cm/s	U_{oD} cm/s	Pe_c co-courant expérimental	Pe_c contre-courant calculé [P 1]
0,723	0,220	42	11
0,723	0,582	35	4,3
0,723	1,163	28	2,4
1,446	0,220	65	15
1,446	0,582	42	3
2,167	0,220	85	17

C O N C L U S I O N

Ce chapitre, consacré aux mesures et à l'interprétation du mélange axial dans chaque phase, présente un modèle statistique pour la phase dispersée. L'intérêt de ce modèle est de présenter une signification physique assez précise, en introduisant comme paramètres le libre parcours moyen et le temps d'arrêt moyen des gouttes de phase dispersée. D'autre part, le modèle permet de déterminer la valeur de la rétention stationnaire et les valeurs trouvées concordent avec les valeurs qui sont déterminées par le modèle du pore stratifié.

Comme nous le verrons dans le chapitre IV, le mélange axial de chaque phase, diminue de façon notable, quand il est important, l'efficacité de l'appareil. Dans notre cas le problème est rendu plus complexe en la présence d'une phase dispersée dont le comportement est différent de celui de la phase continue. Pour cette dernière, le mélange axial reste analogue à celui que l'on observe dans le cas de l'écoulement d'une seule phase.

- CHAPITRE IV -

TRANSFERT DE MATIERE

- P L A N -

<u>INTRODUCTION.....</u>	166
<u>4.1 - DEFINITIONS.....</u>	167
4.11 - <u>Introduction.....</u>	167
4.12 - <u>Efficacités.....</u>	168
a) - <u>Ecoulement à co-courant.....</u>	168
b) - <u>Ecoulement à contre-courant.....</u>	172
4.13 - <u>Nombre d'unités de transfert.....</u>	176
<u>4.2 - MESURES.....</u>	177
4.21 - <u>Techniques de mesures.....</u>	177
a) - <u>Méthode en continu.....</u>	179
b) - <u>Injection en continu.....</u>	179
c) - <u>Méthode d'impulsion.....</u>	180
4.22 - <u>Résultats.....</u>	181
<u>4.3 - CALCUL DU NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT VRAI - MODELES EXISTANTS.....</u>	185
4.31 - <u>Introduction.....</u>	185
4.32 - <u>Modèle PD dans chaque phase.....</u>	186
4.33 - <u>Mélangeurs en série avec débits de retour.....</u>	194

4.4 - <u>CALCUL DE N_{1V} - MODELE PROPOSE</u>	194
4.41 - <u>Exposé du modèle</u>	197
a) - <u>Hypothèses</u>	197
b) - <u>Cas général</u>	198
c) - <u>Modèle statistique</u>	199
4.42 - <u>Applications</u>	202
a) - <u>Ecoulements à co-courant</u>	202
b) - <u>Application aux résultats expérimentaux</u>	204
4.43 - <u>Ecoulements à co-courant avec un mélange axial important -</u> <u>Comparaisons avec le modèle PD</u>	204
a) - <u>Calcul des efficacités de Murphree</u>	204
b) - <u>Cas limites</u>	210
c) - <u>Profils de concentrations</u>	217
4.44 - <u>Extension aux écoulements à contre-courant</u>	225
4.5 - <u>AIRE INTERFACIALE ET COEFFICIENT DE TRANSFERT</u>	225
4.51 - <u>Méthodes de mesures</u>	225
4.52 - <u>Variation du coefficient de transfert</u>	226
<u>CONCLUSION</u>	229

I N T R O D U C T I O N

Dans cette partie, après avoir introduit les principales définitions qui servent à caractériser une opération de contact à courants parallèles pour des écoulements pistons à co et contre-courant (efficacités, hauteur d'une unité de transfert et nombre d'unités de transfert), nous passerons en revue les techniques de mesures et les résultats expérimentaux.

Lorsqu'il y a mélange axial des deux phases en contact, ces définitions restent valables, mais le nombre d'unités de transfert nécessaire pour réaliser une opération donnée est plus important qu'en écoulement piston. Pour calculer ce nombre d'unités de transfert, l'utilisation d'un modèle tenant compte du mélange axial est nécessaire. Nous exposerons les principales méthodes proposées dans la littérature. Elles utilisent, soit le modèle diffusionnel, soit le modèle des mélangeurs en série avec débits de retour.

On a vu dans le chapitre précédent que ces modèles rendaient mal compte des propriétés de mélange surtout pour la phase dispersée. Comme le modèle statistique décrit correctement le comportement des gouttes dans l'appareil, nous l'utiliserons également pour calculer le nombre d'unités de transfert et nous prendrons un modèle à un paramètre pour la phase continue. Ce nouveau mode de calcul sera appliqué à nos résultats, puis étendu aux cas où le mélange axial est plus important tant à co qu'à contre-courant. Ce modèle rend bien compte du fait que souvent on n'observe pas de saut de concentration à l'entrée dans un appareil pour une phase dispersée.

4.1 - DEFINITIONS

4.11 - Introduction

La plupart de ces définitions et de la nomenclature sont empruntées au cours de MM. Defives et Rojey [D 2].

Les concentrations des deux phases seront notées C_1 et C_2 dans le cas général et C_C et C_D lorsque l'on voudra distinguer la phase dispersée et la phase continue. Le transfert est supposé avoir lieu de la phase 1 vers la phase 2 soit, dans le cas de nos expériences de la phase continue vers la phase dispersée. Les conditions à l'entrée sont désignées par l'indice e et les conditions à la sortie par l'indice s.

Le facteur d'extraction Λ caractérise les conditions opératoires :

$$\Lambda = m \frac{Q_1}{Q_2} \text{ ou } = m \frac{Q_C}{Q_D} = m \frac{U_{oC}}{U_{oD}} \quad (\text{IV-1})$$

où Q désigne le débit de la phase considérée et m le coefficient de partage supposé constant pour le domaine de concentration étudié.

$$C_1 = m C_2 \text{ ou } C_C = m C_D \quad (\text{IV-2})$$

Les concentrations vérifient l'équation de bilan :

$$Q_1 (C_{1e} - C_{1s}) = Q_2 (C_{2s} - C_{2e}) \quad (\text{IV-3})$$

ou avec les concentrations C^*

$$\Lambda (C_{1e} - C_{1s}) = C_{1s}^* - C_{1e}^* \quad (\text{IV-4})$$

La notation C_1^* désigne la concentration que l'on aurait en phase 1 si cette phase était en équilibre avec la phase 2 au point considéré. Pour représenter graphiquement les concentrations d'entrée et de sortie d'un appareil d'échange, on peut se placer soit en coordonnées C_1, C_2 , soit C_1, C_1^* (cf. Figure 37 pour un co-courant). Sur ce dernier type de diagramme, la relation d'équilibre est représentée par la première bissectrice et la droite opératoire EF définie par la relation de bilan (IV-4) a comme pente $-\wedge$ dans le cas d'un écoulement à co-courant.

4.12 - Efficacités

Pour caractériser expérimentalement le transfert de matière dans un appareil, on définit des efficacités. L'efficacité est un rapport caractéristique indépendant des concentrations d'entrée et de sortie choisi de manière à prendre la valeur 0 lorsqu'aucun transfert ne s'est opéré dans l'appareil et la valeur 1 pour un cas limite idéal auquel on compare le processus réel.

a) - Ecoulement à co-courant

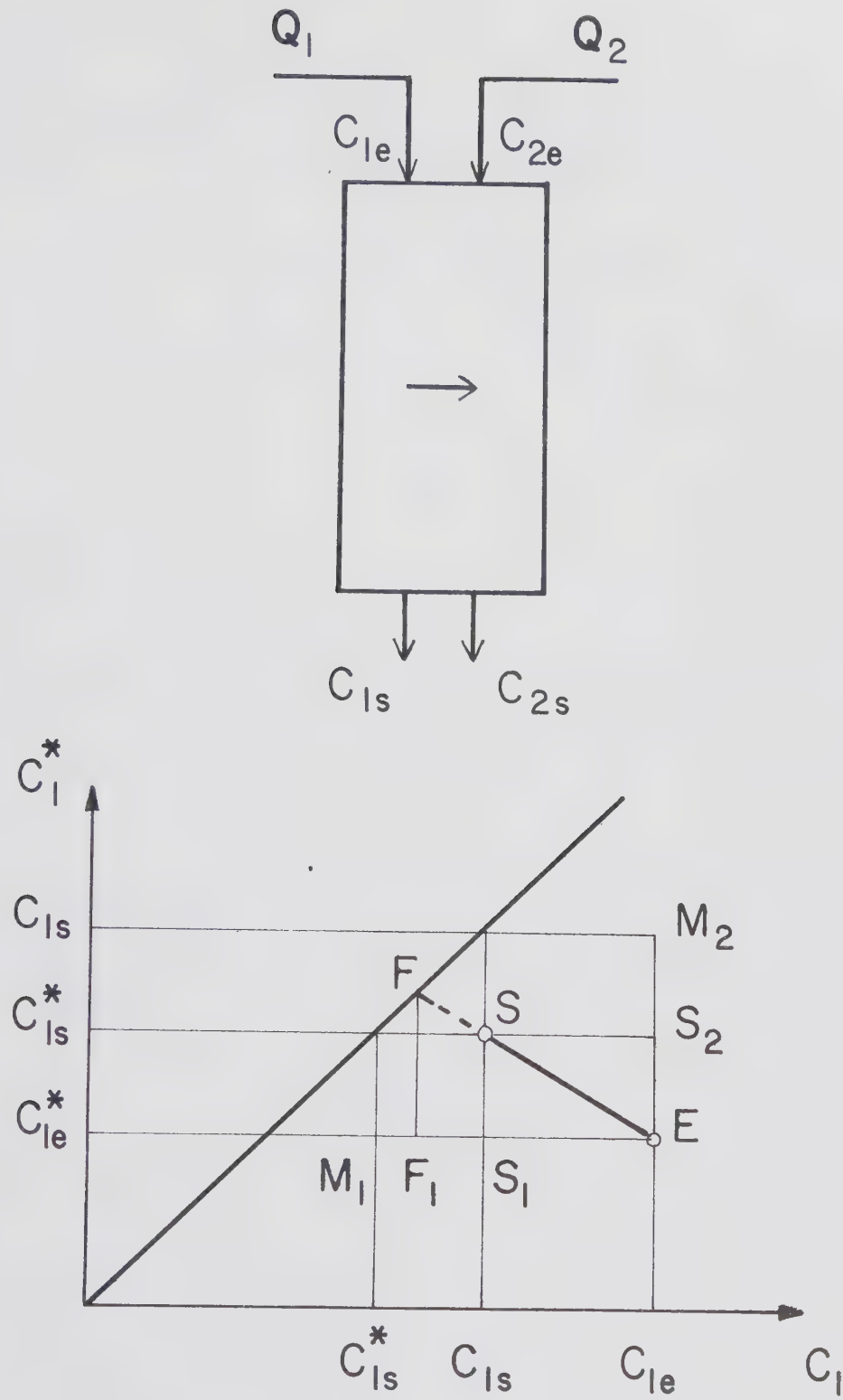
● Efficacité de Murphree

L'évolution des concentrations pour un tel écoulement est schématisée sur la Figure 37. On définit l'efficacité de Murphree par rapport à la phase 1 comme suit :

$$E_{M1} = \frac{C_{1e} - C_{1s}}{C_{1e} - C_{1s}^*} \quad (IV-5)$$

On peut également définir une efficacité de Murphree relative à la phase 2 :

$$E_{M2} = \frac{C_{2e} - C_{2s}}{C_{2e} - C_{2s}^*} = \frac{C_{1e}^* - C_{1s}^*}{C_{1e}^* - C_{1s}} \quad (IV-6)$$



- FIGURE 37 -

REPRESENTATION GRAPHIQUE D'UN TRANSFERT A CO-COURANT

En se reportant sur la Figure 37

$$E_{M1} = \frac{ES_1}{EM_1} = \frac{ES_1}{ES_1 + S_1 M_1} = \frac{1}{\Lambda} \frac{ES_2}{\left(\frac{ES_2}{\Lambda} + S_2 M_2 \right)} \quad (IV-7)$$

$$\text{et } \frac{ES_2}{S_2 M_2} = \frac{E_{M2}}{1 - E_{M2}} \quad (IV-8)$$

On obtient ainsi la relation :

$$E_{M1} = \frac{E_{M2}}{E_{M2} + \Lambda (1 - E_{M2})} \quad (IV-9)$$

• Efficacité de Hausen

L'efficacité de Murphree présente plusieurs inconvénients. Sa valeur est différente suivant que l'on se réfère à la phase 1 ou la phase 2. D'autre part, on compare le système à un cas idéal impossible à atteindre étant donné que le bilan matière n'est pas vérifié.

Pour éviter cela, on introduit l'efficacité de Hausen E_H définie par le rapport $\frac{ES}{EF} [H 2]$. Le point F représente les concentrations de sortie, C_{1f} et C_{1f}^* , que l'on obtiendrait pour un étage théorique avec le même facteur d'extraction.

$$E_H = \frac{C_{1e} - C_{1s}}{C_{1e} - C_{1f}} = \frac{ES_1}{EF_1} \quad (IV-10)$$

$$\text{Compte tenu de la relation } S_1 M_1 = (1 + \Lambda) S_1 F_1 \quad (IV-11)$$

$$\text{on obtient } E_H = \frac{1 + \Lambda}{\Lambda + 1/E_{M1}} \quad (IV-12)$$

Cette efficacité présente également l'avantage de conduire à des relations très simples pour des étages montés en série. A co-courant, on démontre la relation :

$$1 - E_H = \prod_{i=1}^n (1 - E_{Hi}) \quad (IV-13)$$

où E_H représente l'efficacité de Hausen globale pour les i étages et E_{Hi} l'efficacité de Hausen de l'étage i . Les inefficacités de Hausen $(1 - E_H)$ sont multiplicatives pour des étages montés à co-courant.

b) - Ecoulement à contre-courant

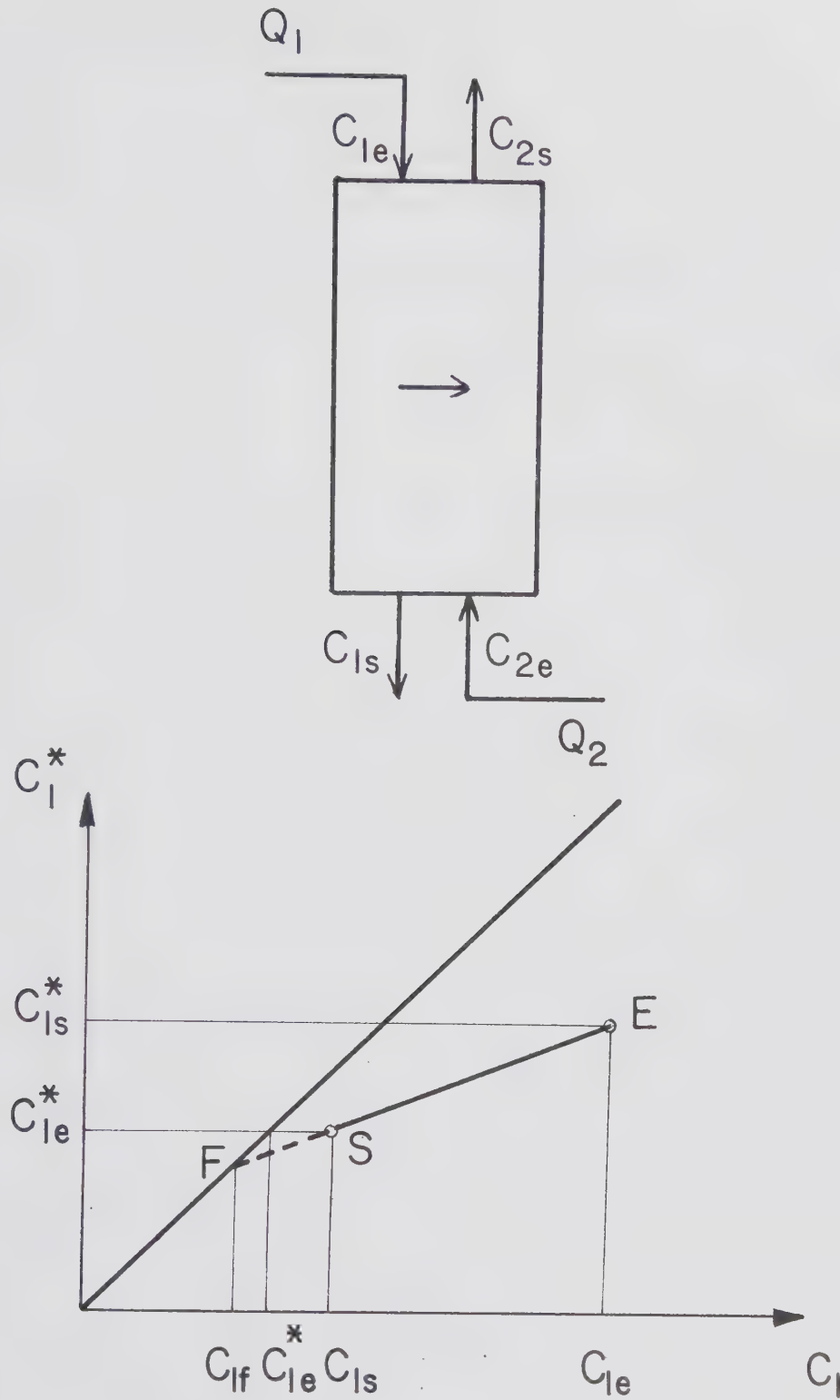
Pour ce type d'écoulement, l'efficacité de Murphree pouvant être plus grande que l'unité a peu d'intérêt et il est préférable d'introduire d'autres efficacités.

En coordonnées C_1, C_1^* (Figure 38) la droite d'équilibre est toujours la première bissectrice et la droite opératoire définie par les points E et S a pour pente $+\Lambda$.

Pour un contact à contre-courant, dans le cas limite d'un transfert très intense, l'équilibre tend à être réalisé non plus entre les deux concentrations de sortie mais entre la concentration d'entrée d'une phase et la concentration de sortie de l'autre phase. On peut alors caractériser le système par les efficacités E_{c_1} et E_{c_2} analogues aux efficacités de Murphree E_{M1} et E_{M2} .

$$\text{Pour la phase 1} \quad E_{c_1} = \frac{C_{1e} - C_{1s}}{C_{1e} - C_{1e}^*} \quad (IV-14)$$

$$\text{Pour la phase 2} \quad E_{c_2} = \frac{C_{2e} - C_{2s}}{C_{2e} - C_{2e}^*} = \frac{C_{1e}^* - C_{1s}^*}{C_{1e}^* - C_{1e}} = \Lambda_{E_{c_1}} \quad (IV-15)$$



- FIGURE 38 -

REPRESENTATION GRAPHIQUE D'UN TRANSFERT A CONTRE-COURANT

L'efficacité E_{c_1} est reliée à l'efficacité de Murphree E_{M1} , par la relation :

$$E_{c_1} = \frac{E_{M1}}{1 + \Lambda E_{M1}} \quad (IV-16)$$

Rojey [R 7] a également introduit une efficacité E_D analogue à l'efficacité de Hausen :

$$E_D = \frac{ES}{EF} \quad (IV-17)$$

Si $\Lambda \leq 1$ cette efficacité est toujours comprise entre 0 et 1

Si $\Lambda > 1$ pour éviter des valeurs de E_D supérieur à 1, on introduit l'efficacité E'_D

$$E'_D = \frac{SE}{SF} \quad (IV-18)$$

$$\text{Si } \Lambda < 1 E_D = \frac{C_{1e} - C_{1s}}{C_{1e} - C_{1f}} \quad (IV-19)$$

Sur la figure, on vérifie que

$$C_{1e}^* - C_{1f} = \Lambda (C_{1s} - C_{1f}) \quad (IV-20)$$

et compte tenu de la relation (IV-17), on obtient :

$$E_D = E_M (1 - \Lambda) \quad (IV-21)$$

$$\text{Si } \Lambda > 1 E'_D = \frac{C_{1s} - C_{1e}}{C_{1s} - C_{1f}} = \frac{E_M (\Lambda - 1)}{1 + E_M (\Lambda - 1)} \quad (IV-22)$$

Pour une série d'étages montés à contre-courant, on peut démontrer une relation analogue à la relation (IV-13) :

$$1 - E_D = \prod_{i=1}^n (1 - E_{Di}) \quad (\text{IV-23})$$

4.13 - Nombre d'unités de transfert

Le nombre d'unités de transfert est un nombre sans dimension faisant intervenir le coefficient de transfert de matière.

Pour un écoulement piston à co-courant le bilan matière dans une tranche de l'appareil s'écrit :

$$U_{o1} \frac{dC_1}{dz} + K_{o1} a (C_1 - C_1^*) = 0 \quad (\text{IV-24})$$

équation qui peut se mettre sous la forme :

$$\frac{dC_1}{C_1 - C_1^*} + \frac{K_{o1} a L}{U_{o1}} dZ = 0 \quad (\text{IV-25})$$

avec $Z = \frac{z}{L}$

Par définition, le groupe sans dimension $N_1 = \frac{K_{o1} a L}{U_{o1}}$ est le nombre d'unités de transfert rapporté à la phase 1. K_{o1} est le coefficient de transfert de matière global rapporté à la phase 1 et a l'aire interfaciale spécifique. Le rapport $HTU_1 = \frac{U_{o1}}{K_{o1} a}$ a la dimension d'une longueur. On l'appelle hauteur équivalente à une unité de transfert.

On obtient :

$$L = N_1 \times HTU_1 \quad (\text{IV-26})$$

L'ensemble des résultats obtenus pour les écoulements pistons à co et contre-courant, à partir de ces définitions, est exposé en [D 2] et est rappelé dans le Tableau VIII. L'intérêt des concentrations réduites définies dans ce tableau est qu'elles sont indépendantes des conditions à l'entrée, ce qui permet d'avoir des équations valables dans tous les cas.

Ces définitions sont conservées dans le cas où l'écoulement n'est pas piston et on peut comparer le nombre d'unités de transfert vrai N_V obtenu pour un appareil au nombre d'unités de transfert que l'on obtiendrait en écoulement piston N_P .

On définit la hauteur d'unités de transfert due à la dispersion par :

$$HTU_D = HTU_P - HTU_V \quad (IV-27)$$

d'où

$$\frac{1}{N_P} = \frac{1}{N_V} + \frac{1}{N_D} \quad (IV-28)$$

4.2 - MESURES

4.21 - Techniques de mesures

Pour la colonne étudiée la phase dispersée (eau) est introduite en continu sans recyclage, la concentration d'entrée dans cette phase, C_{de} est donc nulle et l'équation de bilan (IV-4) devient :

$$C_{ds}^* = \Lambda (C_{ce} - C_{cs}) \quad (IV-29)$$

avec

$$\Lambda = m \frac{U_{oC}}{U_{oD}}$$

- TABLEAU VIII -

RELATIONS POUR DES ÉCOULEMENTS PISTONS A CO-COURANT ET A CONTRE-COURANT

	Co-Courant	Contre-Courant
Nombre d'unités de transfert	$N_1 = - \frac{1}{\Lambda + 1} \ln (C_{1s} - C_{1s}^*)$	$N_1 = \frac{1}{1 - \Lambda} \ln \left[(1 - \Lambda) \frac{1}{C_{1s}} + \Lambda \right]$
Profil de concentration	$C_1 = \frac{\Lambda \exp - (\Lambda + 1) N_1 Z}{\Lambda + 1}$ $C_1^* = \Lambda \frac{1 - \exp - (\Lambda + 1) N_1 Z}{\Lambda + 1}$	$C_1 = \frac{\exp (\Lambda - 1) N_1 Z - \exp (\Lambda - 1) N_1}{1 - \Lambda \exp (\Lambda - 1) N_1}$ $C_1^* = \Lambda \frac{\exp (\Lambda - 1) N_1 Z - \exp (\Lambda - 1) N_1}{1 - \Lambda \exp (\Lambda - 1) N_1}$
Efficacité	$E_{M1} = \frac{1 - \exp (- (\Lambda + 1) N_1)}{1 + \exp (- (\Lambda + 1) N_1)}$	$E_{C1} = 1 - C_{1s} = \frac{1 - \exp (\Lambda - 1) N_1}{1 - \Lambda \exp (\Lambda - 1) N_1}$

$$C_1^* = \frac{c_1^* - c_{1e}^*}{c_{1e} - c_{1e}^*}$$

$$C_1 = \frac{c_1 - c_{1e}}{c_{1e} - c_{1e}^*}$$

Concentrations réduites

Conditions aux limites $C_{1e} = 1$

$C_{1e}^* = 0$

L'efficacité de Murphree rapportée à la phase continue s'écrit :

$$E_{MC} = \frac{C_{ce} - C_{cs}}{C_{ce} - C_{ds}^*} = \frac{1 - \frac{C_{cs}}{C_{ce}}}{1 + \Lambda \frac{C_{cs}}{C_{ce}} - \Lambda} \quad (IV-30)$$

La mesure de l'efficacité pour un écoulement donné (Λ connu) ne sera donc fonction que du rapport $\frac{C_{cs}}{C_{ce}}$. La mesure de la concentration de sortie en phase dispersée sera utilisée pour vérifier le bilan.

Différentes méthodes de mesure de l'efficacité ont été appliquées.

a) - Méthode en continu

Cette méthode est celle qui est généralement utilisée. On fait s'écouler dans la colonne une charge contenant un soluté à un niveau de concentration donné et un solvant. Quand l'équilibre est atteint, on mesure les concentrations d'entrée et de sortie de chaque phase pour déterminer le rapport $\frac{C_{cs}}{C_{ce}}$ et on vérifie le bilan.

Cette méthode en continu n'est pas utilisable dans notre cas. En effet, les débits étant importants, on est obligé de recycler la phase organique et, pour obtenir des mesures d'efficacités en continu, il faudrait posséder une unité de réextraction.

b) - Injection en continu

Pour éviter la réextraction en continu, deux méthodes particulières de mesure ont été utilisées, et, en premier lieu, la méthode de l'injection en continu.

Comme, dans notre cas, une seule phase est recyclée, on peut injecter dans cette phase un débit constant de traceur transférable. On atteint

l'équilibre quand tout le traceur qui est ajouté à la phase recyclée est extrait par la phase non recyclée. On peut donc alors mesurer le rapport des concentrations d'entrée et de sortie en phase continue et connaissant les conditions opératoires, avoir l'efficacité. L'inconvénient de cette méthode est la mesure de concentrations faibles. En effet, on ne récupère pas le traceur contenu dans l'eau qui s'écoule de l'appareil et on ne peut pas se permettre d'en jeter des quantités importantes.

Cette méthode a été utilisée sur la colonne de grand diamètre. L'introduction du traceur se fait dans la phase continue (isooctane) avant l'entrée dans la colonne, les prises d'échantillon sont les mêmes que pour les mesures de mélange axial immédiatement à la fin du garnissage. Deux autres prises d'échantillon ont été prévues, une dans la bretelle de sortie d'isooctane, l'autre dans la même phase avant le garnissage (cf. Figure 1), les échantillons ainsi obtenus sont utilisés pour vérifier le bilan total et le débit de traceur injecté. On a choisi le transfert de la phase continue vers la phase dispersée pour perturber le moins possible l'hydrodynamique qui a été mesurée sans transfert.

Le traceur utilisé est la méthyl-éthyl-cétone dont le coefficient de partage massique est voisin de 1. Il est injecté au moyen d'une pompe doseuse dont le débit mesuré plusieurs fois au cours d'un essai reste bien constant. Les trois prises d'échantillon d'isooctane et celle d'eau (voir Figure 1) sont analysées par chromatographie gaz-liquide avec comme étalon interne l'acétone. On trouvera dans l'annexe A le coefficient de partage massique $m' = \frac{C'_C}{C_D}$ et l'étalonnage du chromatographe pour le couple méthyl-éthyl-cétone - acétone.

c) - Méthode d'impulsion

Cette méthode, la seule applicable quand les deux phases sont recyclées, a été décrite par Defives et Rojey [D 3] et vérifiée expérimentalement par Sautin [S 3] sur une de nos colonnes de 5 cm de diamètre.

C'est une mesure en régime transitoire : on injecte à l'entrée de la colonne, dans une des phases (la phase continue par exemple), une quantité connue m_e de traceur transférable et on mesure, à la sortie, la quantité non transférée m_s . La mesure se fait en intégrant la courbe de réponse. On démontre [D 3] que, si le système est linéaire, le rapport m_s/m_e est équivalent au terme C_{cs}/C_{ce} obtenu en régime transitoire.

Cette méthode a l'avantage d'être plus rapide que la méthode d'injection en continu, mais elle demande une très grande précision. Par exemple, pour un facteur d'extraction Λ de 10, une imprécision de 1 % sur m_s/m_e entraîne une erreur de l'ordre de 40 % sur l'efficacité de Murphree. Par contre, pour des Λ plus faibles, l'erreur est plus acceptable. Nous avons appliqué cette méthode à la colonne de grand diamètre, mais les résultats, très dispersés, n'ont pas été pris en considération.

4.22 - Résultats

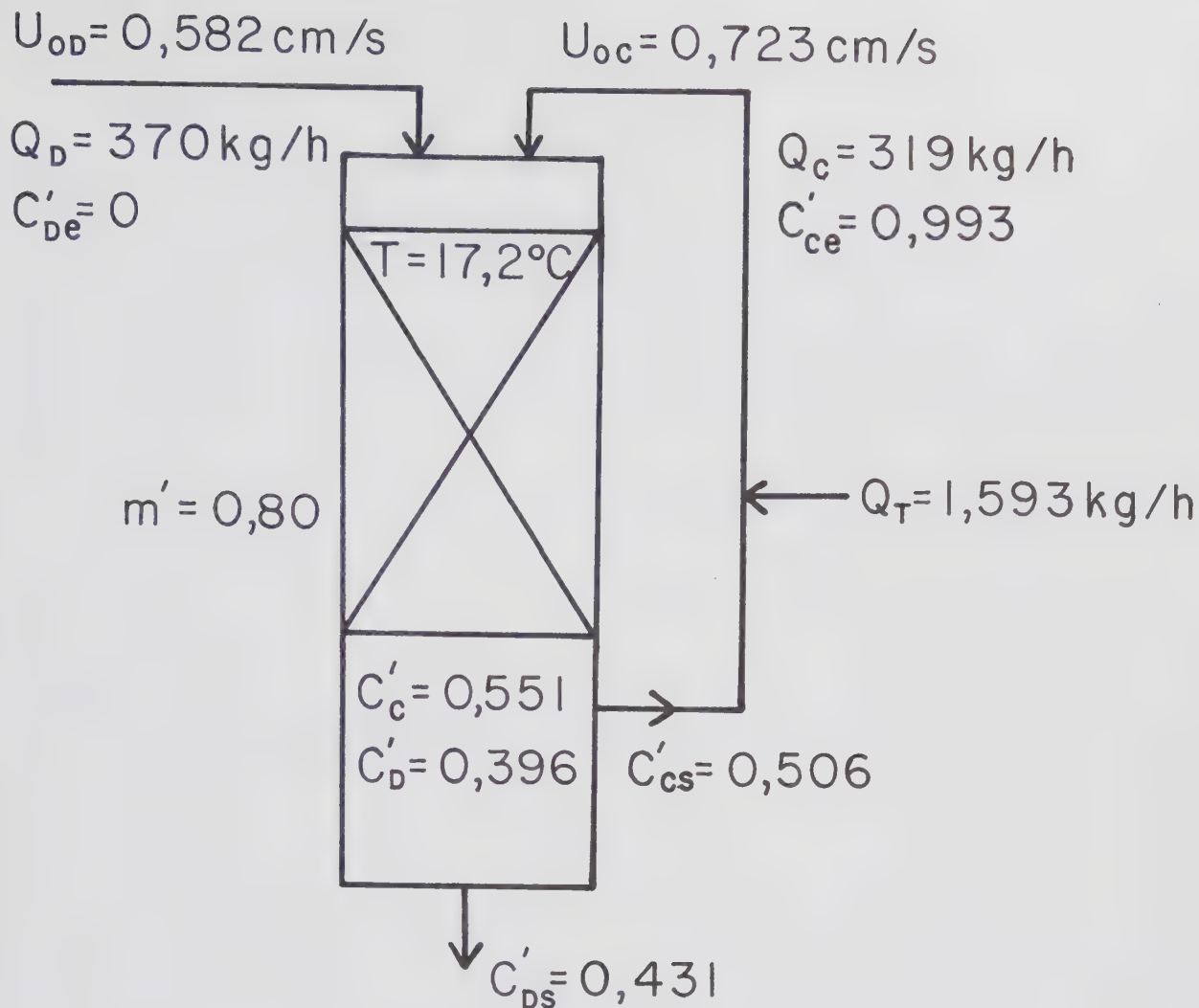
Les résultats d'efficacités obtenus par la méthode d'injection en continu avec la colonne de grand diamètre sont rassemblés sur le Tableau IX pour 17 couples de débit. En plus de l'efficacité de Murphree par rapport à la phase continue, on a calculé :

- le facteur d'extraction Λ
- l'efficacité de Murphree par rapport à la phase dispersée
- l'efficacité de Hausen
- les nombres d'unités de transfert, par rapport à chaque phase, que l'on obtiendrait pour un écoulement piston (Tableau VIII)

Les résultats indiqués représentent les moyennes de plusieurs mesures. Les bilans (dans le garnissage, dans le décanteur et dans la colonne entière) sont vérifiés à 5 % dans la plupart des cas. On donne sur la Figure 39 l'en-

RESULTATS D'EFFICACITES

U_{OC}	U_{OD}	$\Lambda \frac{U_{OC}}{P_c} \frac{U_{OD}}{U_n}$	E_{MC} expéri- mentale	$E_{MD} = \frac{\Lambda}{(\Lambda-1) + 1/E_{MC}}$	$E_H = \frac{1 + \Lambda}{\Lambda + 1/E_{MC}}$	$\frac{1}{\Lambda+1} \ln \frac{N_{PC} = \Lambda E_{MC} + 1}{1 - E_{MC}}$	$N_{PD} = \Lambda N_{PC}$
0,723	0,220	1,87	0,56	0,70	0,785	0,535	1,003
0,723	0,582	0,71	0,65	0,57	0,760	0,836	0,592
0,723	1,163	0,35	0,76	0,53	0,811	1,230	0,436
0,723	1,745	0,24	0,87	0,61	0,892	1,802	0,425
0,723	2,326	0,18	0,98	0,90	0,983	3,459	0,613
1,446	0,220	3,75	0,35	0,67	0,719	0,267	1,001
1,446	0,582	1,42	0,50	0,59	0,707	0,508	0,720
1,446	1,163	0,71	0,73	0,66	0,822	1,010	0,716
1,446	1,745	0,47	0,86	0,74	0,900	1,567	0,740
1,446	2,326	0,35	0,95	0,87	0,963	2,426	0,860
2,167	0,220	5,61	0,19	0,57	0,608	0,142	0,795
2,167	0,582	2,12	0,38	0,56	0,657	0,343	0,727
2,167	1,163	1,06	0,72	0,74	0,845	0,903	0,959
2,167	1,745	0,71	0,89	0,85	0,933	1,579	1,117
2,892	0,220	7,49	0,12	0,50	0,537	0,091	0,679
2,892	0,582	2,83	0,40	0,65	0,719	0,331	0,937
2,892	1,163	1,42	0,80	0,85	0,906	0,979	1,388



E_M (garnissage) = 0,652

E_M (décanteur) = 0,208

E_M (totale) = 0,740

Bilan dans le garnissage $\pm$ 51 g/h de traceur soit 3,2 %

C'_{ds} obtenu par bilan = 0,421 % poids

Débit de traceur obtenu par bilan = 1,555 kg/h

- FIGURE 39 -

EXEMPLE DE MESURE D'EFFICACITE

semble des chiffres obtenus pour un couple de débits donné durant une expérience.

Sur les graphiques 40 et 41 ont été représentés les résultats les plus significatifs. Sur le graphique 40, les efficacités de Murphree par rapport à la phase continue, ont été portées en fonction du débit de phase continue. La Figure 41 représente les nombres d'unités de transfert par rapport à la phase dispersée obtenus en admettant un écoulement piston.

Ces résultats seront discutés dans les paragraphes suivants. On peut remarquer que les efficacités varient beaucoup en fonction des débits et que la plupart des courbes passent par des minima.

4.3 - CALCUL DU NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT VRAI - MODELES EXISTANTS

4.31 - Introduction

Lorsqu'il y a mélange axial, il faut pour réaliser une opération donnée un nombre d'unités de transfert plus grand qu'en écoulement piston sans dispersion. De la même manière l'efficacité de Murphree d'un extracteur en mélange partiel sera plus faible que celle du même appareil en écoulement piston à condition que les nombres d'unités de transfert soient égaux.

Ceci est illustré sur la Figure 42 sur laquelle on a porté l'efficacité de Murphree calculée pour un paquet fluide en fonction de son temps de séjour lorsqu'il échange de la matière avec une phase de concentration donnée. Cette efficacité peut être calculée à partir de l'équation (IV-40), démontrée plus loin .

$$E_M(t) = 1 - e^{-\frac{K_o \alpha}{\xi x_T} t} \quad (IV-31)$$

Pour un écoulement piston $t = \bar{t}$ (temps de séjour moyen) pour tous les paquets fluides et on obtient bien :

$$E_{Mp} = 1 - \exp(-N_p) \quad (IV-32)$$

Quand il y a mélange axial, il y a une distribution des temps de séjour et l'efficacité moyenne E_{Mv} sera plus faible que E_{Mp} (voir Figure 42), cette efficacité dépend de la fonction de distribution des temps de séjour de la phase en mélange partiel $C(t)$:

$$E_{Mv} = \int_{t_0}^{t_F} C(t) E_M(t) dt \quad (IV-33)$$

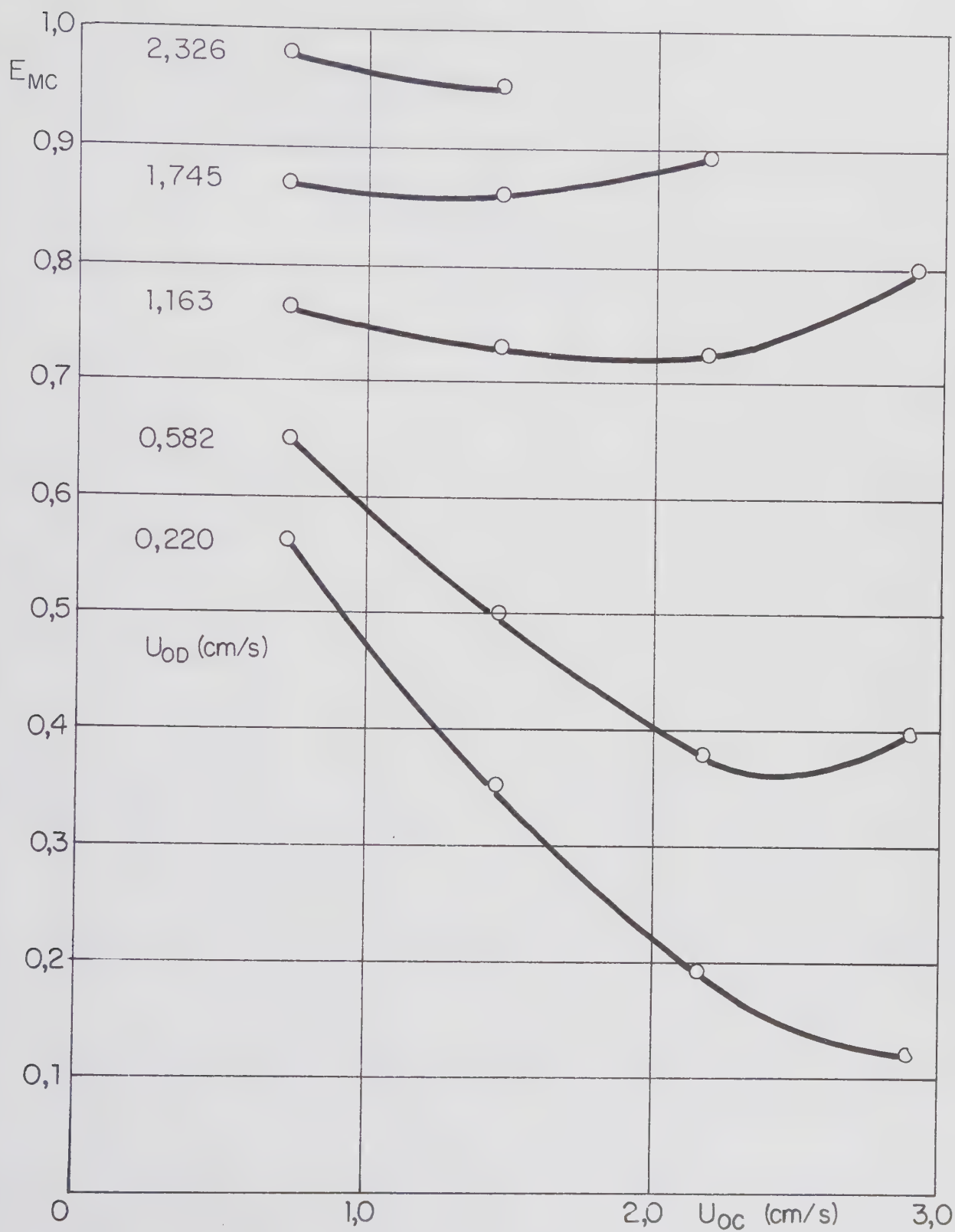
Cette relation n'est strictement vraie que si l'on fait l'hypothèse d'une ségrégation totale, c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'interaction entre les paquets fluides.

Le problème est d'obtenir le nombre d'unités de transfert vrai connaissant l'efficacité de l'appareil et les caractéristiques de mélange de chaque phase, ou inversement, connaissant le coefficient de transfert de masse (donc le nombre d'unités de transfert vrai), de calculer l'efficacité de l'appareil en présence d'un mélange axial des deux phases.

Pour faire ce calcul, deux modèles de mélange axial ont été utilisés soit le modèle PD pour chaque phase, soit le modèle des cellules parfaitement mélangées en série avec débits de retour. Dans tous les cas, les débits et le coefficient de partage sont supposés constants dans tout l'appareil.

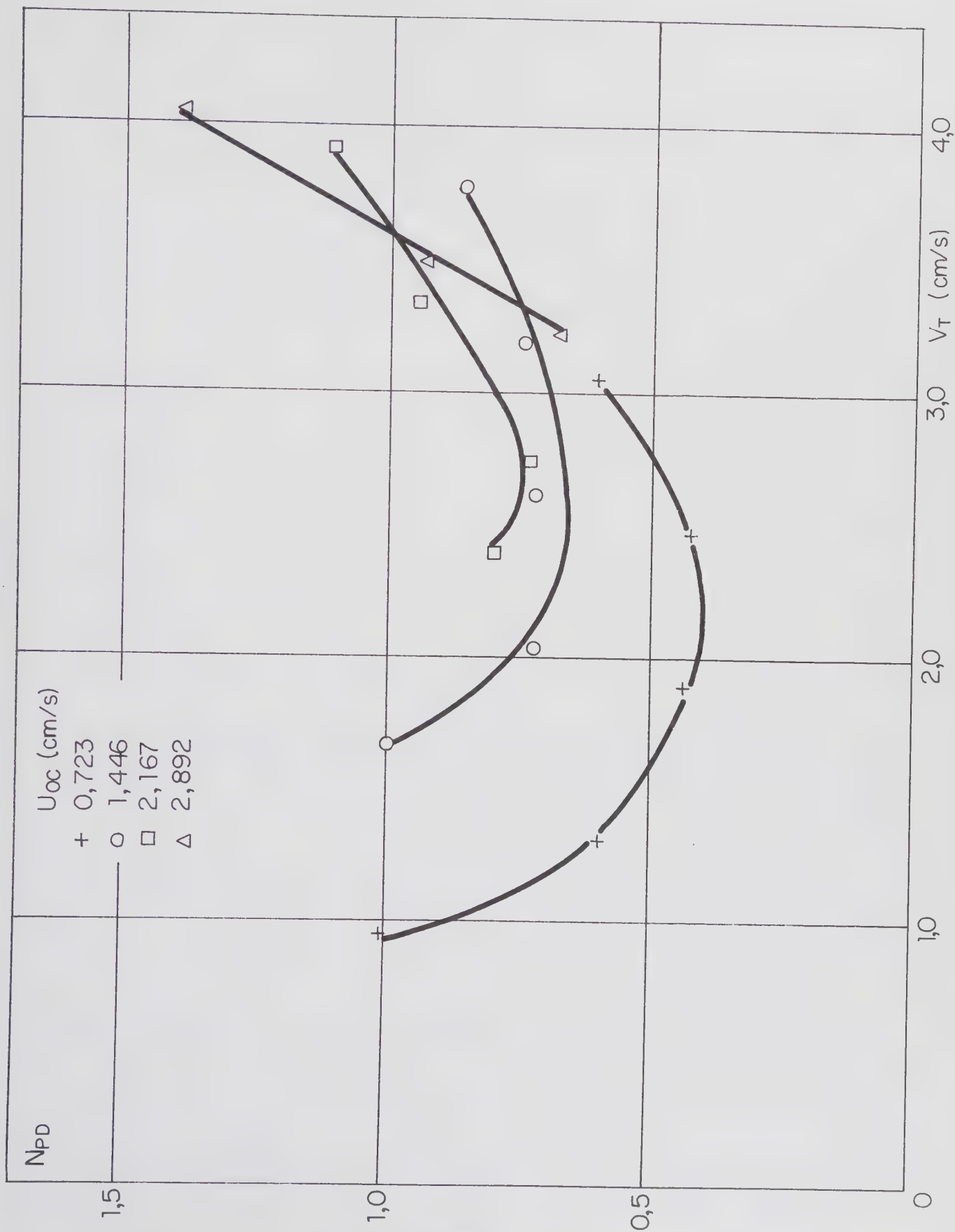
4.32 - Modèle PD dans chaque phase

En posant la relation de bilan en soluté sur chaque phase pour une tranche de longueur dz , on obtient pour le co-courant avec le modèle PD, le



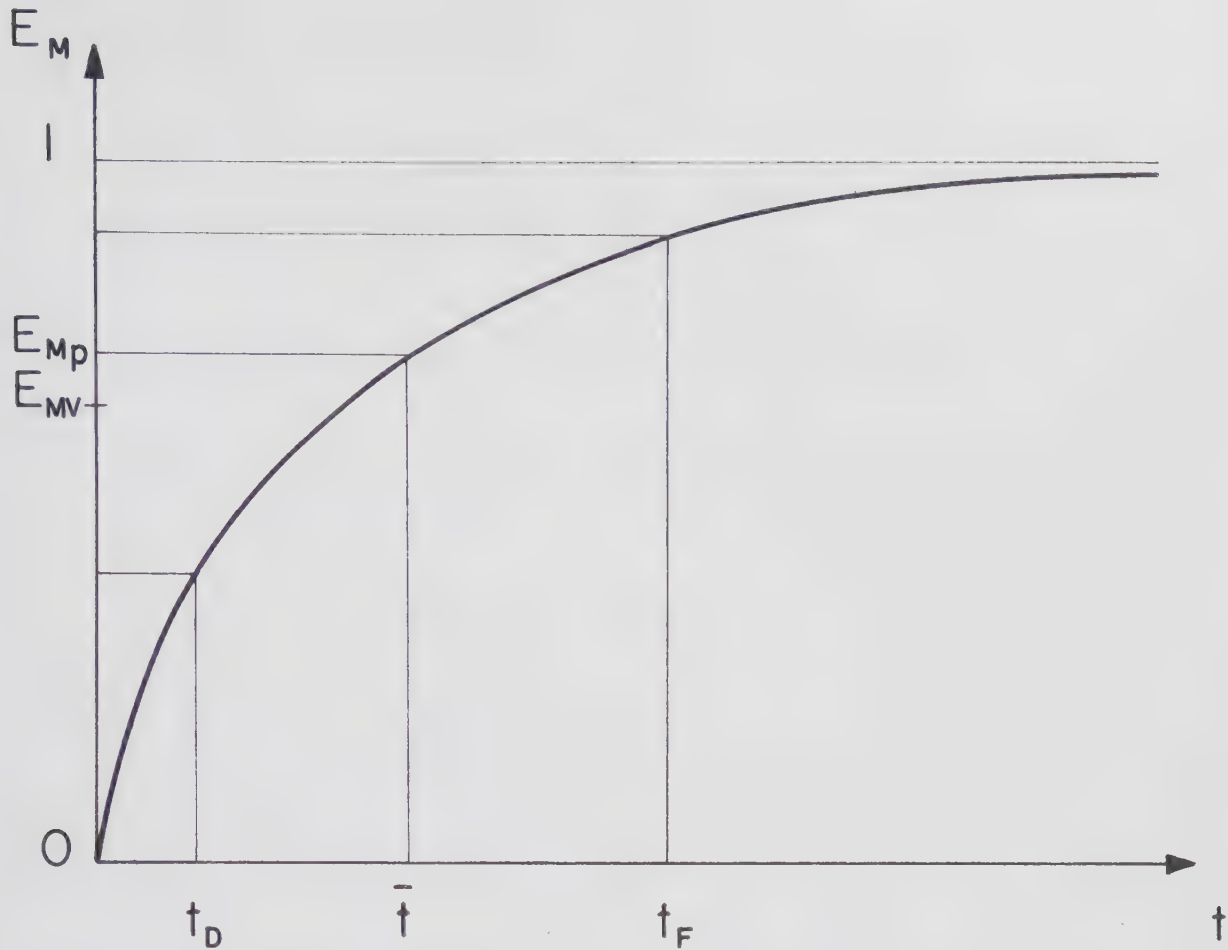
- FIGURE 40 -

EFFICACITES DE MURPHREE PAR RAPPORT A LA PHASE CONTINUE



- FIGURE 41 -

NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT PAR RAPPORT A LA PHASE DISPERSEE (ECOULEMENT PISTON)



- FIGURE 42 -

EFFICACITE DE MURPHREE EN FONCTION DU TEMPS DE SEJOUR

E_{MP} = Efficacité pour un écoulement piston

t_D, t_F = Temps de début et de fin du pic de distribution des temps de séjour

E_{Mv} = Efficacité vraie pour un écoulement en mélange partiel

système d'équations différentielles [M 3, S 4] :

$$\begin{aligned} \frac{1}{Pe_1} \frac{d^2}{dZ^2} C_1 - \frac{d}{dZ} C_1 - N_1 (C_1 - C_1^*) &= 0 \\ \frac{1}{Pe_2} \frac{d^2}{dZ^2} C_1^* - \frac{d}{dZ} C_1^* - \Lambda N_1 (C_1 - C_1^*) &= 0 \end{aligned} \quad (IV-34)$$

où C_1 et C_1^* sont les concentrations réduites définies dans le Tableau VIII et Z l'abscisse réduite $Z = \frac{z}{L}$.

Les conditions aux limites sont :

$$\begin{aligned} \text{à } Z = 0 \quad \left(C_1 - \frac{1}{Pe_1} \frac{dC_1}{dZ} \right)_{Z=0} &= 1 \quad \text{et} \quad \left(C_1^* - \frac{1}{Pe_2} \frac{dC_1^*}{dZ} \right)_{Z=0} = 0 \\ \text{à } Z = 1 \quad \left(\frac{dC_1}{dZ} \right)_{Z=1} &= 0 \quad \text{et} \quad \left(\frac{dC_1^*}{dZ} \right)_{Z=1} = 0 \end{aligned} \quad (IV-35)$$

On peut écrire un système analogue pour l'écoulement à contre-courant.

Miyauchi, Vermeulen et coll. ont résolu ce système d'équation [M 3] et ont déterminé le profil des concentrations pour un grand nombre de valeurs des 4 paramètres indépendants : N_1 , Λ , Pe_1 , Pe_2 pour les écoulements à contre-courant [M 6] et à co-courant [M 2].

La solution se présente sous la forme :

$$\begin{aligned} C_1 &= \sum_{i=1}^4 A_i e^{\lambda_i Z} \\ C_1^* &= \sum_{i=1}^4 a_i A_i e^{\lambda_i Z} \end{aligned} \quad (IV-36)$$

où a_i , A_i et λ_i sont des fonctions des 4 paramètres indépendants.

Les efficacités (E_C pour le contre-courant et E_M pour le co-courant) sont données à partir des concentrations réduites à la sortie

$$E_{c1} = 1 - C_{1s} \quad (\text{IV-37})$$

$$E_{M1} = \frac{1 - C_{1s}}{1 - C_{1s}^*} \quad (\text{IV-38})$$

Le calcul des profils de concentrations et de l'efficacité est long et nécessite un ordinateur. Une illustration de ces profils est donnée sur la Figure 43 pour un écoulement à co-courant avec un mélange axial assez important.

Des méthodes de calcul approchées mais plus rapides ont été proposées [M 3, R 9, S 6] pour les écoulements à contre-courant.

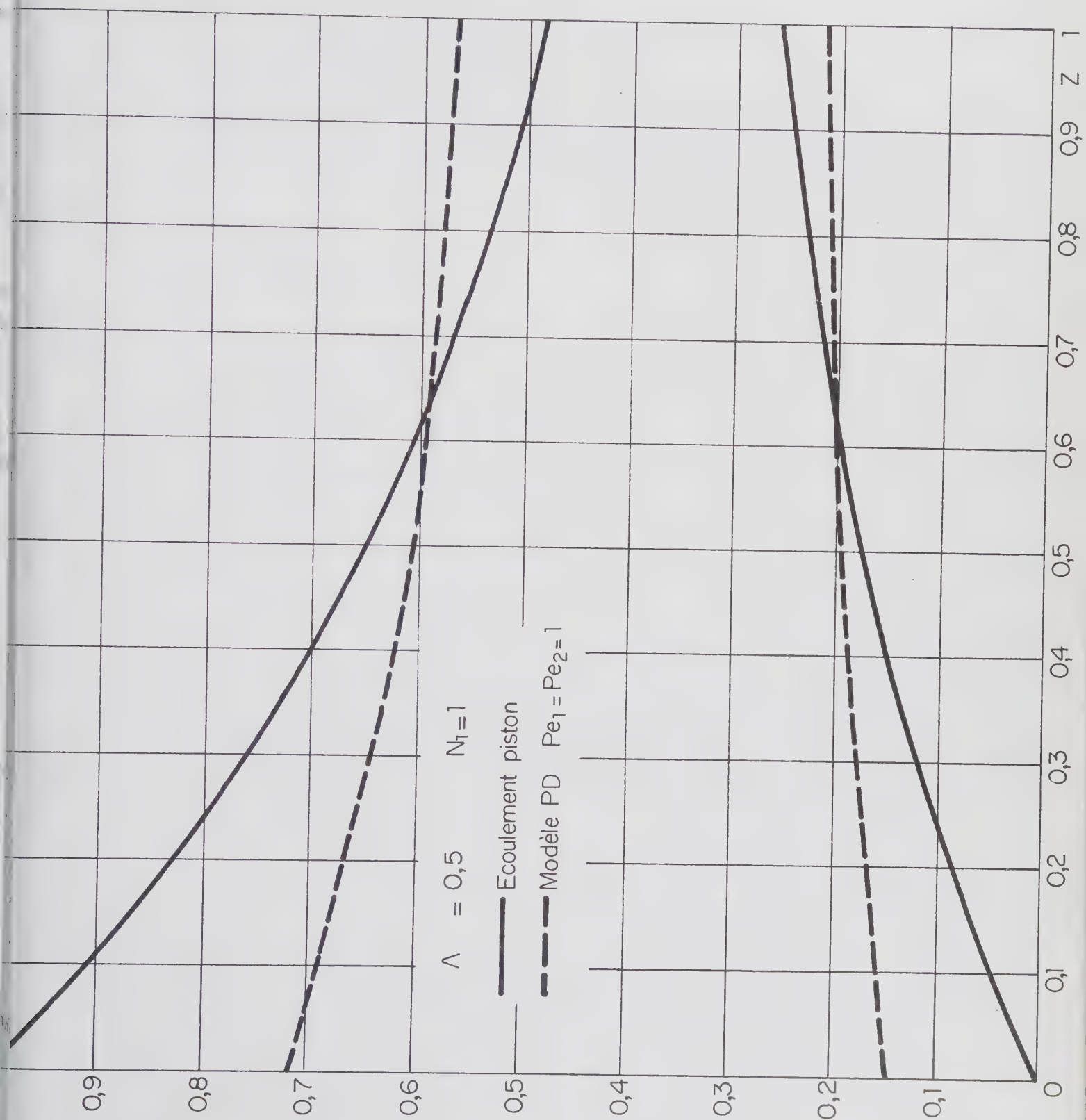
4.33 - Mélangeurs en série avec débits de retour

Ce modèle est analysé pour des écoulements à contre-courant (cf. 3.13 c) avec transfert de matière dans les références [H 1, L 3, M 4, S 5] .

Ce modèle devient équivalent au modèle PD quand le nombre de cellules devient grand, Hartland et Mecklenburg [H 1] ont comparé ces deux approches.

4.4 - CALCUL DE N_{1V} - MODELE PROPOSE

Comme nous l'avons déjà signalé dans le chapitre III, le modèle PD n'est pas très satisfaisant surtout pour l'écoulement de la phase dispersée et



- FIGURE 43 -

PROFILS DE CONCENTRATIONS - ECOULEMENT PISTON ET MODELE PD

nous avons représenté le mélange axial de cette phase par le modèle statistique.

D'autre part, le modèle PD appliqué à deux phases en écoulement avec transfert donne pour chaque phase des profils de concentration comportant un saut à l'entrée (cf. Figure 43). Or comme on n'observe pas de retour en arrière pour la phase dispersée, ce saut de concentration ne devrait pas exister. Ce phénomène a déjà été souligné par Misek et Rod [M 1, R 10].

4.41 - Exposé du modèle

a) - Hypothèses

Ce modèle est applicable non seulement aux écoulements à co-courant mais aussi à ceux à contre-courant.

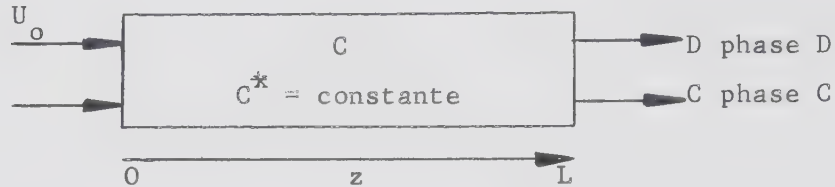
Les hypothèses sont les suivantes :

- le mélange axial de la phase dispersée correspond au modèle statistique développé au paragraphe 3.3
- le mélange axial en phase continue est représenté par le modèle des cellules en série parfaitement mélangées. Ce modèle est choisi essentiellement pour la simplicité des calculs auxquels il conduit. Le modèle diffusionnel serait également applicable à condition d'admettre qu'il est possible de considérer des propriétés moyennes en phase dispersée même sur un intervalle de longueur très faible.
- les débits et le coefficient de partage, donc le facteur d'extraction, sont constants.

Nous prendrons de plus le cas où le transfert a lieu de la phase continue vers la phase dispersée.

b) - Cas général

Considérons une opération de transfert entre deux phases C et D à contact parallèle en admettant une concentration uniforme en phase continue et une distribution des temps de séjour $f(z, t)$ en phase dispersée.



C Concentration en phase D

C^* Concentration de la phase D qui serait en équilibre avec la phase C

U_o Débit rapporté à la section, en phase D

$K_{oD} a$ Coefficient de transfert x aire interfaciale

A chaque temps de séjour t , correspond une concentration $C(t)$. En régime permanent pour une ségrégation totale de la phase dispersée, la concentration moyenne $\bar{C}$ est alors définie par la relation

$$C(z) = \int_0^\infty f(z, t) C(t) dt \quad (IV-39)$$

Soit une petite partie (ou une goutte) de la phase D de volume δV . Le temps de séjour est t pour cette goutte, on peut écrire l'équation de bilan de traceur :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C \delta V + K_{oD} a \frac{\delta V}{\epsilon x_T} (C - C^*) &= 0 \\ \text{soit } \frac{d}{dt} C + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T} (C - C^*) &= 0 \end{aligned} \quad (IV-40)$$

En multipliant l'équation (IV-40) par $f(t, z)$ et en intégrant sur une section, il vient

$$\int_0^{\infty} f(t, z) \left(\frac{d}{dt} C \right) dt + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T} (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (IV-41)$$

Soit en intégrant par partie avec $\left[f(t, z) \cdot C \right]_0^{\infty} = 0$

$$- \int_0^{\infty} C \left[\frac{\partial}{\partial t} f(t, z) \right] dt + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T} (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (IV-42)$$

c) - Modèle statistique

Dans le cas du modèle statistique la résolution de l'équation (IV-42) est faite dans l'annexe D et on obtient pour la concentration en phase dispersée la relation :

$$U_{oD} \frac{d}{dz} C_D + K_{oD} a \left[\frac{1 + K_{oD} a / \epsilon x_T (h_a + h_d)}{1 + K_{oD} a / \epsilon x_T h_d} \right] (C_D - C_D^*) = 0 \quad (IV-43)$$

Pour un écoulement piston dans les mêmes conditions, on obtient :

$$U_{o1} \frac{d}{dz} C_1 + K_{o1} a (C_1 - C_1^*) = 0 \quad (IV-44)$$

Tout se passe donc comme si nous avions un écoulement piston pour la phase dispersée avec N_D (éq. IV-53).

Avec la distribution des temps de séjour du modèle statistique, il est possible de démontrer le même résultat de manière plus directe.

On utilise la notion d'efficacité pour un temps de séjour donné, c'est-à-dire pour une goutte (éq. IV-31) puis on calcule l'efficacité moyenne pour la distribution des temps de séjour obtenue par le modèle statistique. Cette méthode est utilisée par Rojey et Defives [R 8] pour l'efficacité d'un mélangeur parfait.

L'efficacité de Murphree par rapport à une goutte de phase dispersée ayant un temps de séjour t est, si on a mélange parfait (donc concentration constante) en phase continue :

$$E_M(t) = 1 - \exp \left[- \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T} t \right] \quad (\text{IV-45})$$

Pour un écoulement piston, toutes les gouttes ont le même temps de séjour $t = \bar{t} = \frac{L \epsilon x_T}{U_{oD}}$ et on obtient

$$E_{MD} = 1 - \exp \left[- \frac{K_{oD} a L}{U_{oD}} \right] = 1 - \exp [N_D]$$

qui est l'efficacité de Murphree d'un extracteur dont la phase continue est en mélange parfait et la phase dispersée en écoulement piston.

Dans le cas du modèle statistique l'efficacité globale par rapport à la phase dispersée sera avec $C(t)$ fonction de distribution des temps de séjour :

$$E_{MD} = \int_0^{\infty} C(t) E_M(t) dt \quad (\text{IV-46})$$

Soit avec (IV-45)

$$E_{MD} = 1 - \int_0^{\infty} C(t) \exp \left(- \frac{K_{oD} a t}{\epsilon x_T} \right) dt \quad (\text{IV-47})$$

Posons $p' = \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T}$

il vient $E_{MD} = 1 - \int_0^{\infty} C(t) \exp(-p' t) dt \quad (\text{IV-48})$

le deuxième terme de l'équation (IV-48) est la définition de la transformée de Laplace de $C(t)$ avec $p' = \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T}$.

La transformée de Laplace de l'équation de distribution des temps de séjour du modèle statistique est (voir annexe B) par rapport à l'origine $t = 0$.

$$\bar{C} = \exp \left[- t_m p \left(1 - \frac{h_a}{h_d + p} \right) \right] \quad (IV-49)$$

avec (III-20), on obtient

$$p \cdot t_m = \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T} \cdot \frac{L}{U_{oD}} \epsilon x_T \frac{h_d}{h_a + h_d} \quad (IV-50)$$

ce qui donne pour $\bar{C}$:

$$\bar{C} = \exp \left[- N_D \left(\frac{1 + K_{oD} a / \epsilon_T (h_a + h_d)}{1 + K_{oD} a / \epsilon_T h_d} \right) \right] \quad (IV-51)$$

Soit en revenant à l'équation (IV-48)

$$E_{MD} = 1 - \exp \left[- N'_D \right] \quad (IV-52)$$

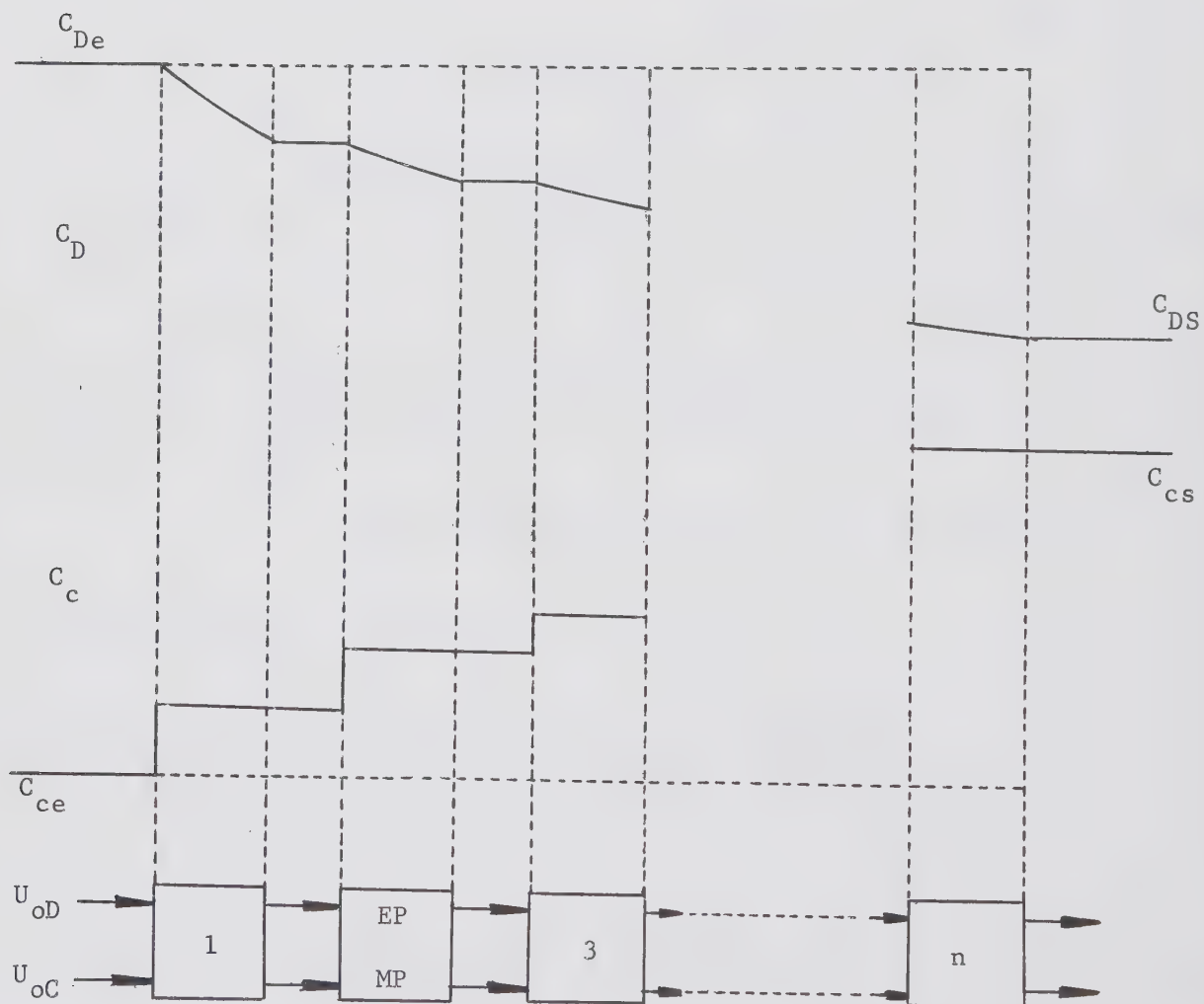
Tout se passe donc comme si nous avions un écoulement piston pour la phase dispersée caractérisé par un nombre d'unités de transfert modifié N'_D .

$$N'_D = \frac{K_{oD} a L}{U_{oD}} \left[\frac{1 + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T (h_a + h_d)}}{1 + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T h_d}} \right] \quad (IV-53)$$

4.42 - Applications

a) - Ecoulements à co-courant

On caractérisera le mélange axial de la phase continue par une série de n mélangeurs parfaitement mélangés en série. Pour chacun de ces mélangeurs la concentration en phase continue est constante et celle de la phase dispersée est donnée par l'équation (IV-43). On peut alors schématiser l'écoulement et les profils de concentration comme suit :



EP = Ecoulement piston
MP = Mélange parfait

- la phase dispersée est en écoulement piston. Elle est caractérisée par un nombre d'unités de transfert N'_D donné par le modèle statistique (éq. IV-53). Le nombre d'unités de transfert élémentaire pour un étage étant $N'_{De} = N'_D/n$.
- la phase continue est en mélange parfait dans chaque étage. Son état de mélange pour l'ensemble de l'appareil est caractérisé par le nombre de cellules en série n .

Deux types de calcul peuvent se présenter :

- On désire obtenir le nombre d'unités de transfert vrai connaissant l'efficacité et les paramètres de mélange.

A partir de E_{MD} , on peut obtenir l'efficacité de Hausen globale E_{Hg} (éq. IV-12). Tous les étages, définis par le mélange de la phase continue, ont la même efficacité, on aura donc l'efficacité élémentaire d'un étage par la relation (IV-13).

$$1 - E_{Hg} = (1 - E_{He})^n$$

et on obtient l'efficacité de Murphree élémentaire (éq. IV-12).

Pour chacun des mélangeurs on peut écrire

$$E_{MeD} = 1 - \exp(-N'_{De}) \quad (IV-54)$$

qui donne $N'_D = N'_{De} \cdot n$ et on peut avoir à partir de l'équation (IV-53) le produit $K_{oD} \times a$ donc le nombre d'unités de transfert vrai.

- On désire savoir les concentrations de sortie pour un appareil dont on connaît les paramètres de transfert et de mélange.

L'équation (IV-53) donne N'_D donc N'_{De} , l'équation (IV-54) donne E_{MeD} et par l'intermédiaire de l'efficacité de Hausen, on obtient E_{MD} .

b) - Application aux résultats expérimentaux

L'ensemble des résultats nécessaires au calcul du nombre d'unités de transfert vrai par le modèle PD et par le modèle proposé est donné dans le Tableau X. Les résultats sont comparés au nombre d'unités de transfert en écoulement piston dans le Tableau XI.

Pour nos résultats la perte d'efficacité due au mélange axial des deux phases est très faible comme on peut le voir sur la Figure 44. En effet, l'augmentation du nombre d'unités de transfert est inférieure à 10 %.

Pour ces expériences, le modèle PD et le modèle proposé donnent les mêmes résultats (Tableau XI). La comparaison entre les deux modèles n'est pas intéressante quand le mélange axial influence peu l'efficacité de l'appareil, c'est pourquoi nous l'avons étendue aux cas où le mélange axial est important.

4.43 - Ecoulements à co-courant avec un mélange axial important - Comparaisons avec le modèle PD

a) - Calcul des efficacités de Murphree

Pour pouvoir comparer le modèle statistique au modèle PD, il faut disposer d'un modèle normalisé. A partir des moments du modèle SM (cf. annexe B), on peut écrire

$$h_a = \frac{2 (\bar{t} - t_m)^2}{\sigma^2 t_m} \text{ et } h_d = \frac{2 (\bar{t} - t_m)}{\sigma^2} \quad (\text{IV-55})$$

où σ^2 et $\bar{t}$ sont la variance et le temps de séjour moyen du pic.

- TABEAU X -

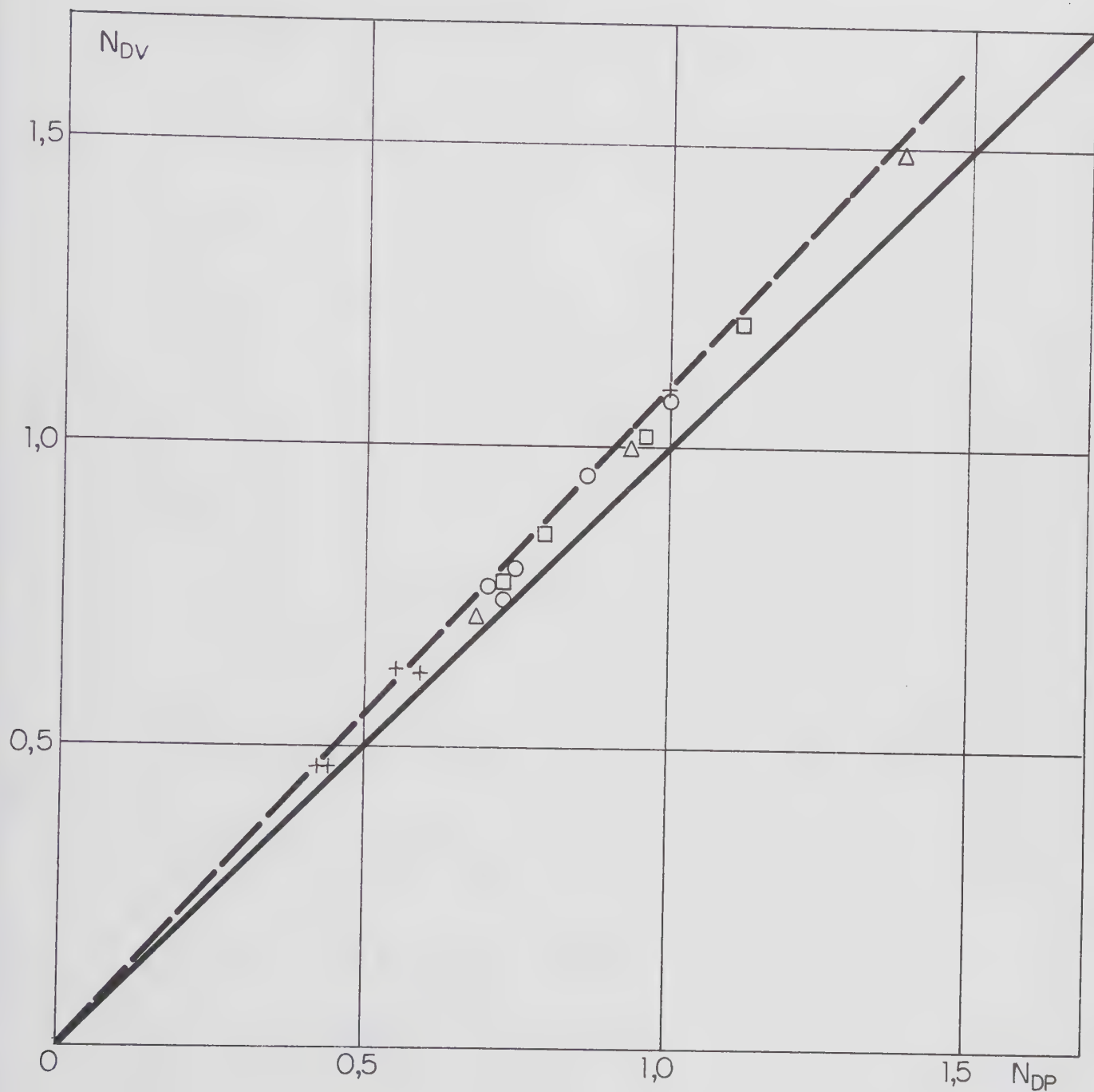
ENSEMBLE DES RESULTATS DE LA COLONNE DE 15 CM

Débits		Modèle statistique					Phase continue n	Efficacité		Phase dispersée Pe _D
U _{oc} cm/s	U _{oD} cm/s	h _{a-1} sec ⁻¹	h _{d-1} sec ⁻¹	t _m sec	x _T	x _S		E _{MC}	E _H	
0,723	0,220	0,189	0,111	31,3	0,122	0,077	22,3	0,56	0,785	12,1
0,723	0,582	0,240	0,245	25,5	0,184	0,095	18,2	0,65	0,760	19,5
0,723	1,163	0,306	0,426	20,9	0,277	0,116	13,2	0,76	0,811	32,4
0,723	1,745	0,368	0,656	20,4	0,369	0,132	10,8	0,87	0,892	51,9
0,723	2,326	0,420	0,758	17,7	0,425	0,151	13,9	0,98	0,983	50,5
1,446	0,220	0,176	0,115	34,1	0,124	0,074	48,0	0,35	0,719	11,9
1,446	0,582	0,254	0,269	27,8	0,207	0,100	20,9	0,50	0,707	21,4
1,446	1,163	0,362	0,465	20,7	0,281	0,121	16,0	0,73	0,822	32,8
1,446	1,745	0,400	0,652	19,5	0,362	0,136	16,6	0,86	0,900	45,1
1,446	2,326	0,386	0,704	17,4	0,416	0,147	14,2	0,95	0,963	41,3
2,167	0,220	0,207	0,103	25,2	0,110	0,074	45,4	0,19	0,608	9,2
2,167	0,582	0,175	0,211	35,0	0,244	0,104	29,6	0,38	0,657	26,0
2,167	1,163	0,361	0,387	19,4	0,281	0,136	19,3	0,72	0,845	23,8
2,167	1,745	0,366	0,563	17,7	0,339	0,134	15,9	0,89	0,933	34,2
2,892	0,220	0,170	0,088	32,2	0,137	0,090	51,4	0,12	0,537	10,2
2,892	0,582	0,318	0,216	20,3	0,192	0,114	36,2	0,40	0,719	14,8
2,892	1,163	0,431	0,449	16,9	0,257	0,126	17,8	0,80	0,906	24,7

- TABLEAU XI -

NOMBRES D'UNITES DE TRANSFERT VRAI ET APPARENT

Débits		Nombre d'unités de transfert		
U_{oC} cm/s	U_{oD} cm/s	Ecoulement piston N_{DP}	vrai N_{DV}	
			Modèle PD	Modèle SM
0,723	0,220	1,003	1,087	1,088
0,723	0,582	0,592	0,622	0,621
0,723	1,163	0,436	0,460	0,462
0,723	1,745	0,425	0,459	0,466
0,723	2,326	0,552	0,605	0,624
1,446	0,220	1,001	1,080	1,068
1,446	0,582	0,720	0,751	0,747
1,446	1,163	0,716	0,752	0,753
1,446	1,745	0,740	0,780	0,787
1,446	2,326	0,860	0,933	0,952
2,167	0,220	0,795	0,858	0,853
2,167	0,582	0,727	0,751	0,757
2,167	1,163	0,959	1,013	1,014
2,167	1,745	1,117	1,196	1,206
2,892	0,220	0,679	0,720	0,717
2,892	0,582	0,937	0,997	0,992
2,892	1,163	1,388	1,492	1,492



- FIGURE 44 -

COMPARAISON DU NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT VRAI ET DU NOMBRE D'UNITES DE TRANSFERT APPARENT

L'équation (IV-53) devient pour un mélangeur :

$$N'_{De} = \frac{N_D}{n} \left[\frac{1 + \frac{K_{oD} \sigma^2 t_m}{\epsilon_{x_T} \cdot 2 (\bar{t} - t_m) \bar{t}}}{1 + \frac{K_{oD} \sigma^2 \bar{t}}{\epsilon_{x_T} 2 (\bar{t} - t_m) \bar{t}}} \right] \quad (IV-56)$$

En introduisant la variance réduite $V_D = \frac{\sigma^2}{\bar{t}^2}$ et la fraction de gouttes à l'arrêt

$$TM = \frac{t_m}{\bar{t}} = \frac{h_d}{h_a + h_d} = \frac{x_d}{x_T} \quad (IV-58)$$

on obtient :

$$N'_{De} = \frac{N_D}{n} \left(\frac{2 - TM + N_D V_D TM}{2 - TM + N_D V_D} \right) \quad (IV-59)$$

Pour comparer à partir des mêmes données (N, Λ, Pe_D, Pe_c) les deux modèles, il faut obtenir le nombre de mélangeurs en série et V_D . Pour cela, nous aurons (cf. Tableau V).

$$V_D = \frac{2}{Pe_D} - \frac{2}{Pe_D^2} (1 - e^{-Pe_D}) \quad (IV-60)$$

$$\text{et } n = \frac{1}{V_c} = 1 / \left(\frac{2}{Pe_c} - \frac{2}{Pe_c^2} (1 - e^{-Pe_c}) \right)$$

Pour TM nous prendrons outre les cas limites $TM = 0$ (toute la phase est à l'arrêt) et $TM = 1$ (écoulement piston) quelques cas intermédiaires.

Les Figures 45 et 46 comparent les résultats obtenus par les deux modèles dans deux cas particuliers. Sur ces figures, on a représenté l'efficacité de Murphree en fonction de la variance du pic de sortie en phase dispersée (exprimée en nombre de Peclet)

- pour le modèle PD
- pour le modèle SM en prenant différentes valeurs de TM

Pour chaque cas (N_v , Δ et Pe_c donnés), on observe que, pour un certain pourcentage de phase dispersée à l'arrêt ($1 - TM$), les résultats globaux (efficacité de Murphree) sont voisins pour les deux modèles. Pour la Figure 45 la correspondance est pour $TM \approx 0,2$, pour la Figure 46 c'est pour $TM \approx 0,4$.

Quand le mélange axial en phase dispersée est important, la fraction à l'arrêt influence notablement l'efficacité de l'appareil pour une variance de pic de sortie donnée. Les figures montrent que l'influence du mélange axial de la phase dispersée peut être presque nulle (l'écoulement tend alors vers un écoulement piston) même si la variance du pic de sortie est grande et qu'inversement si TM tend vers zéro, la perte d'efficacité devient plus importante que pour le modèle PD.

Enfin quel que soit l'état de mélange de la phase continue, les résultats sont très semblables à partir de $Pe_D = 100$ et ils sont très proches entre $Pe_D = 10$ et $Pe_D = 100$. Nos résultats expérimentaux se plaçant dans ce domaine, il est logique que N_{DV} soit semblable avec les deux modèles.

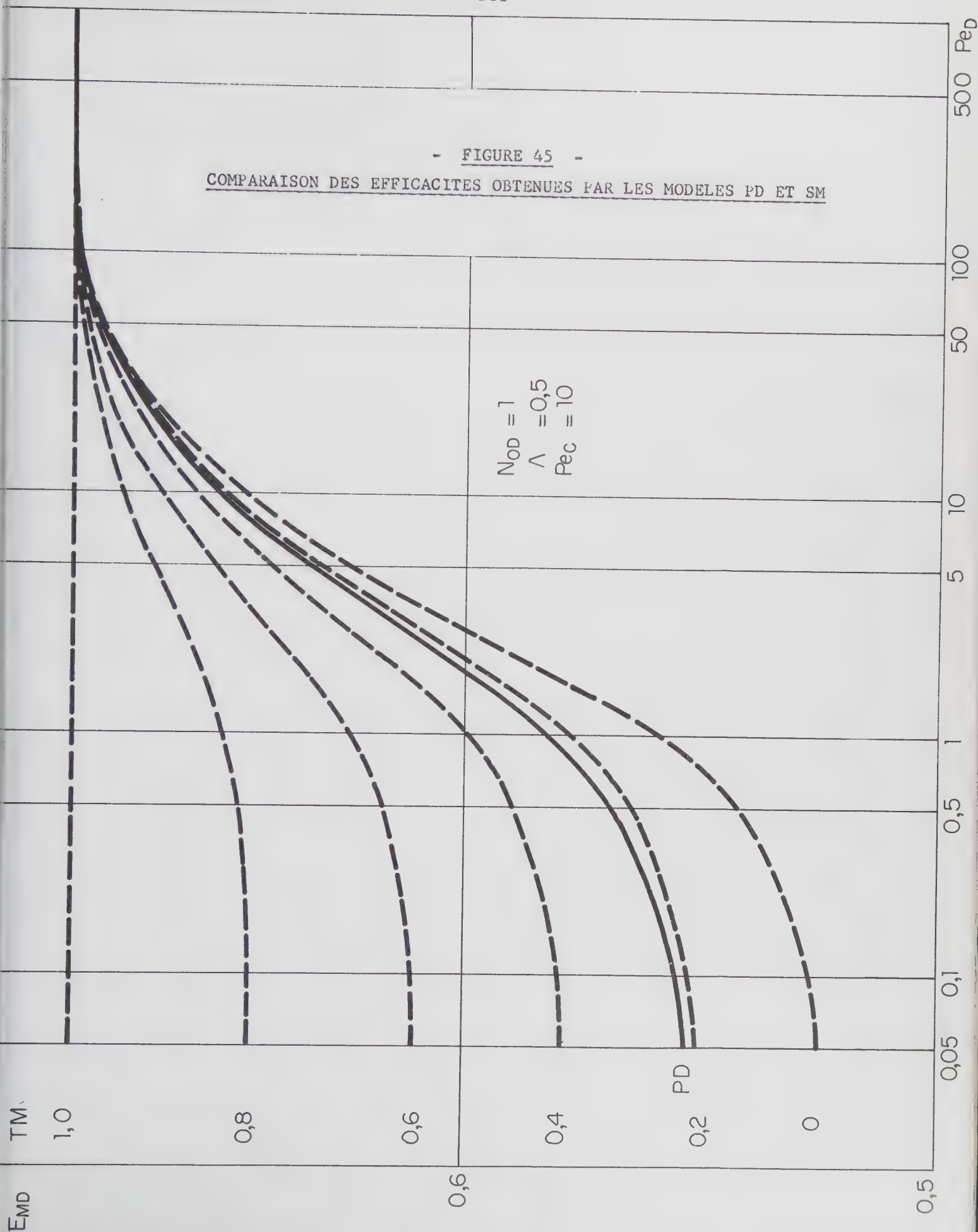
b) - Cas limites

Nous avons porté sur la Figure 47 l'évolution des courbes avec TM pour une variance fixée.

Pour $TM = 1$, c'est-à-dire la rétention stationnaire nulle, nous obtenons une courbe de Dirac unité pour $t = \bar{t}$, soit un écoulement piston. En effet, on obtient $N_D' = N_D = N_{DP}$.

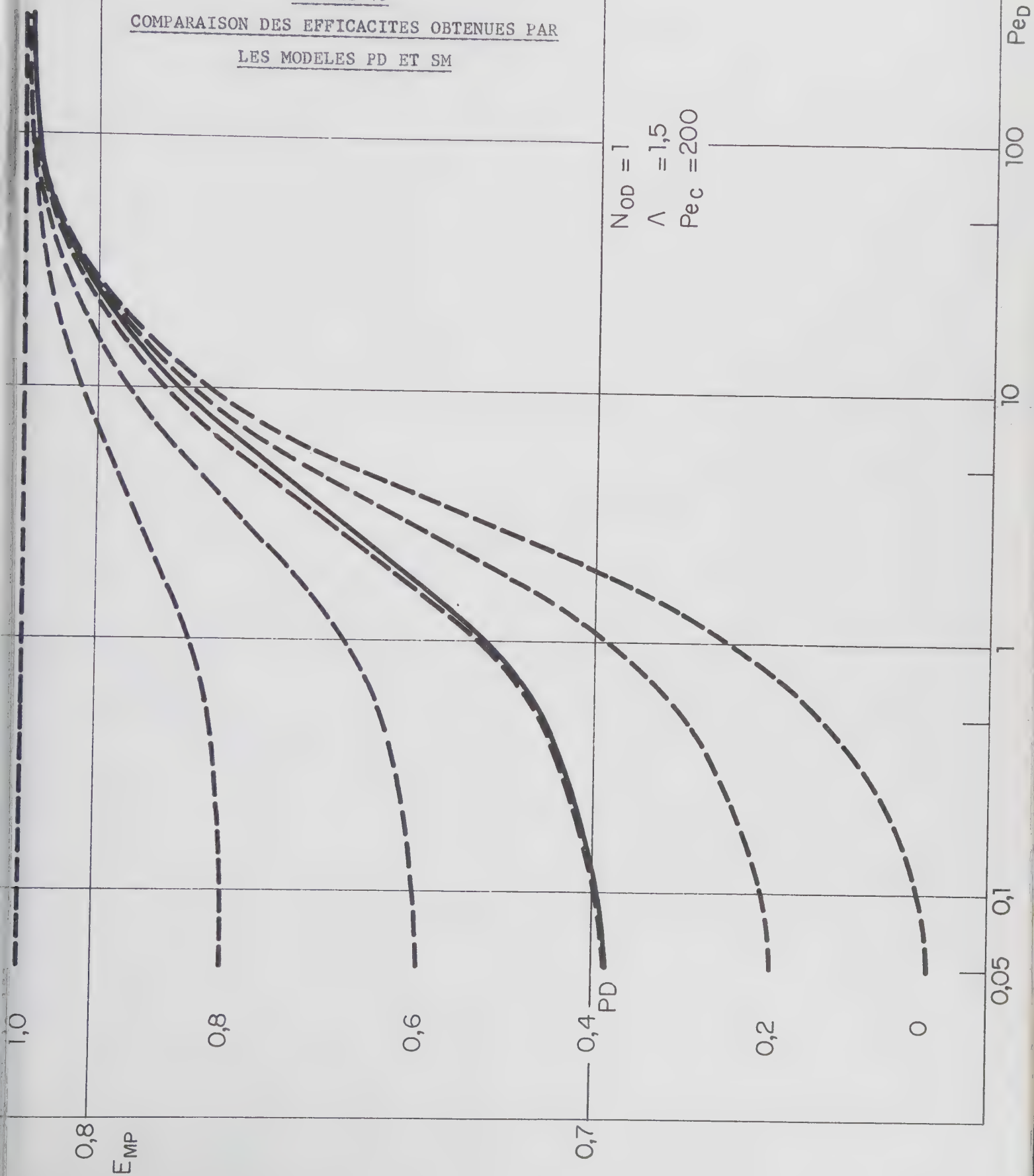
- FIGURE 45 -

COMPARAISON DES EFFICACITES OBTENUES PAR LES MODELES PD ET SM



- FIGURE 46 -

COMPARAISON DES EFFICACITES OBTENUES PAR
LES MODELES PD ET SM

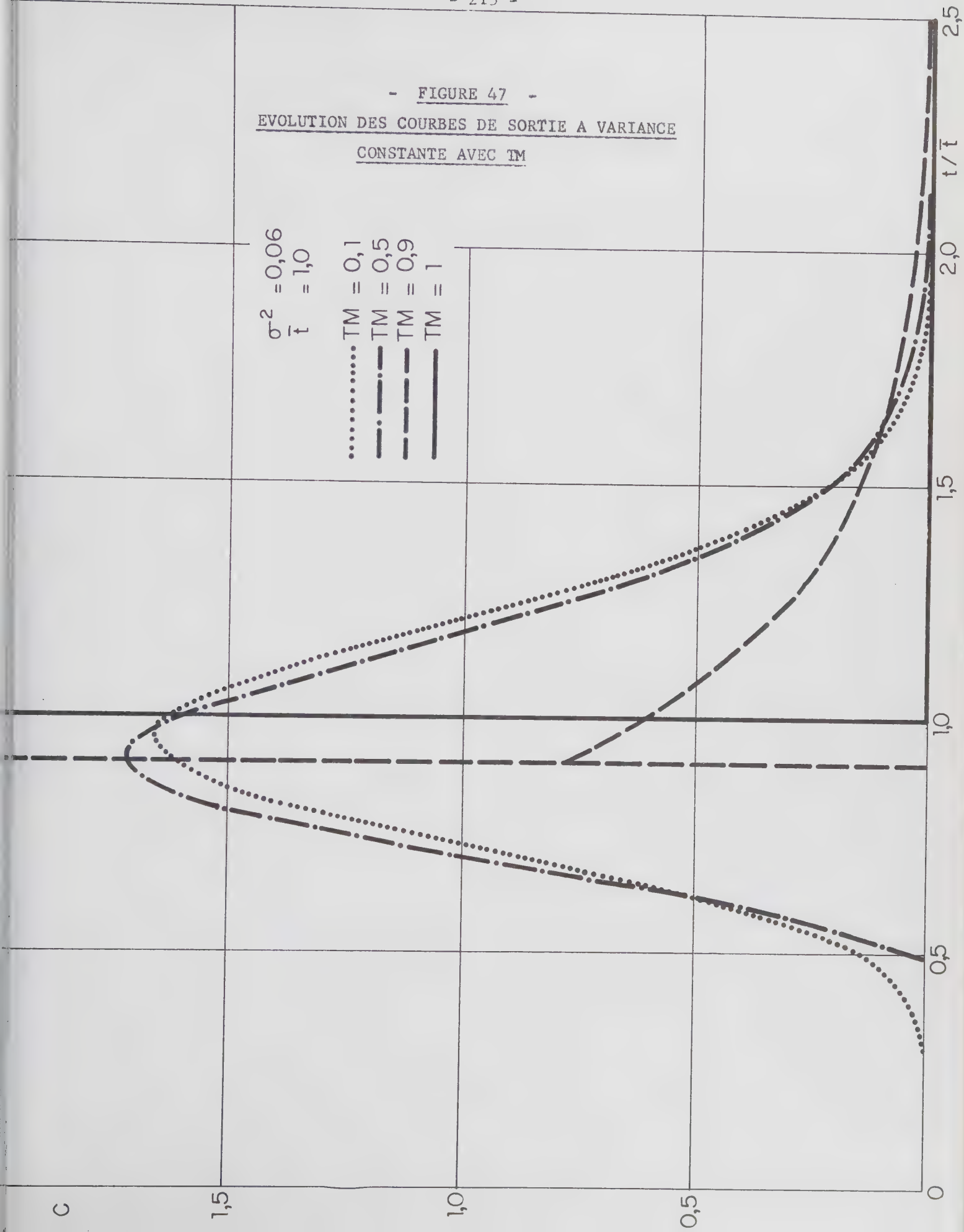


- FIGURE 47 -

EVOLUTION DES COURBES DE SORTIE A VARIANCE
CONSTANTE AVEC TM

$\sigma^2 = 0,06$
 $\bar{t} = 1,0$

..... $TM = 0,1$
- · - · - $TM = 0,5$
- - - - $TM = 0,9$
———— $TM = 1$



Le cas $TM = 0$ n'a pas de signification physique (toute la phase dispersée est à l'arrêt). Pour TM légèrement supérieur à 0 les courbes sont étalées.

Entre ces deux limites, les courbes à variance constante sont de plus en plus pointues mais ont une fin de pic de plus en plus longue.

c) - Profils de concentrations

Pour le modèle proposé le calcul des profils de concentrations se fait pour chacun des n étages. Les concentrations C et C^* sont les concentrations réduites définies précédemment rapportées à la phase dispersée. Pour ce calcul, il est plus pratique de supposer un transfert de la phase dispersée vers la phase continue.

On notera C_i^* la concentration de la phase continue dans le $i^{\text{ème}}$ étage et C_i celle de la phase dispersée qui quitte cette cellule. A l'entrée de la colonne, on a :

$$C_0 = 1 \qquad C_0^* = 0$$

Dans le $i^{\text{ème}}$ étage, C_i^* est constant et la concentration de la phase dispersée est donnée par l'équation (IV-43)

$$\frac{dC}{dZ} = - N_D' (C - C_i^*) \tag{IV-61}$$

et on obtient

$$\frac{i-1}{n} < Z < \frac{i}{n} \quad \frac{C - C_i^*}{C_{i-1} - C_i^*} = \exp \left[- N_D' \left(Z - \frac{i-1}{n} \right) \right] \tag{IV-62}$$

A la sortie du $i^{\text{ème}}$ étage $Z = \frac{i}{n}$

donc

$$\frac{C_i - C_i^*}{C_{i-1} - C_i} = \exp \left(- \frac{N_D'}{n} \right) \quad (\text{IV-63})$$

L'équation de bilan pour un étage s'écrit :

$$\Lambda (C_{i-1} - C_i) = C_i^* - C_{i-1}^* \quad (\text{IV-64})$$

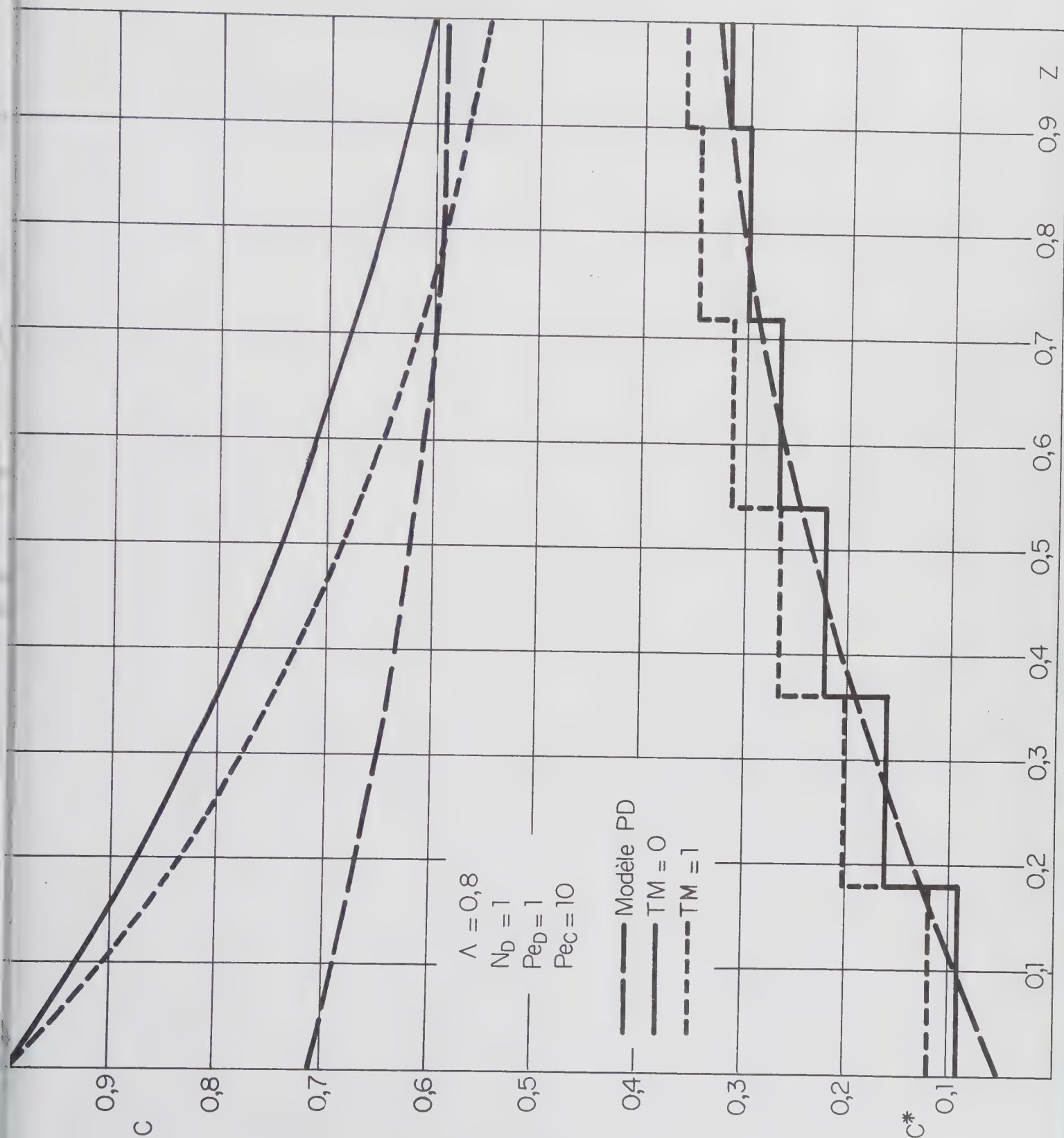
La résolution du système (IV-63, IV-64) donne les concentrations C_i et C_i^* .

Si le nombre de cellules est faible, il est nécessaire d'avoir le profil de concentration de la phase dispersée dans une cellule, elle est donnée par la relation (IV-62).

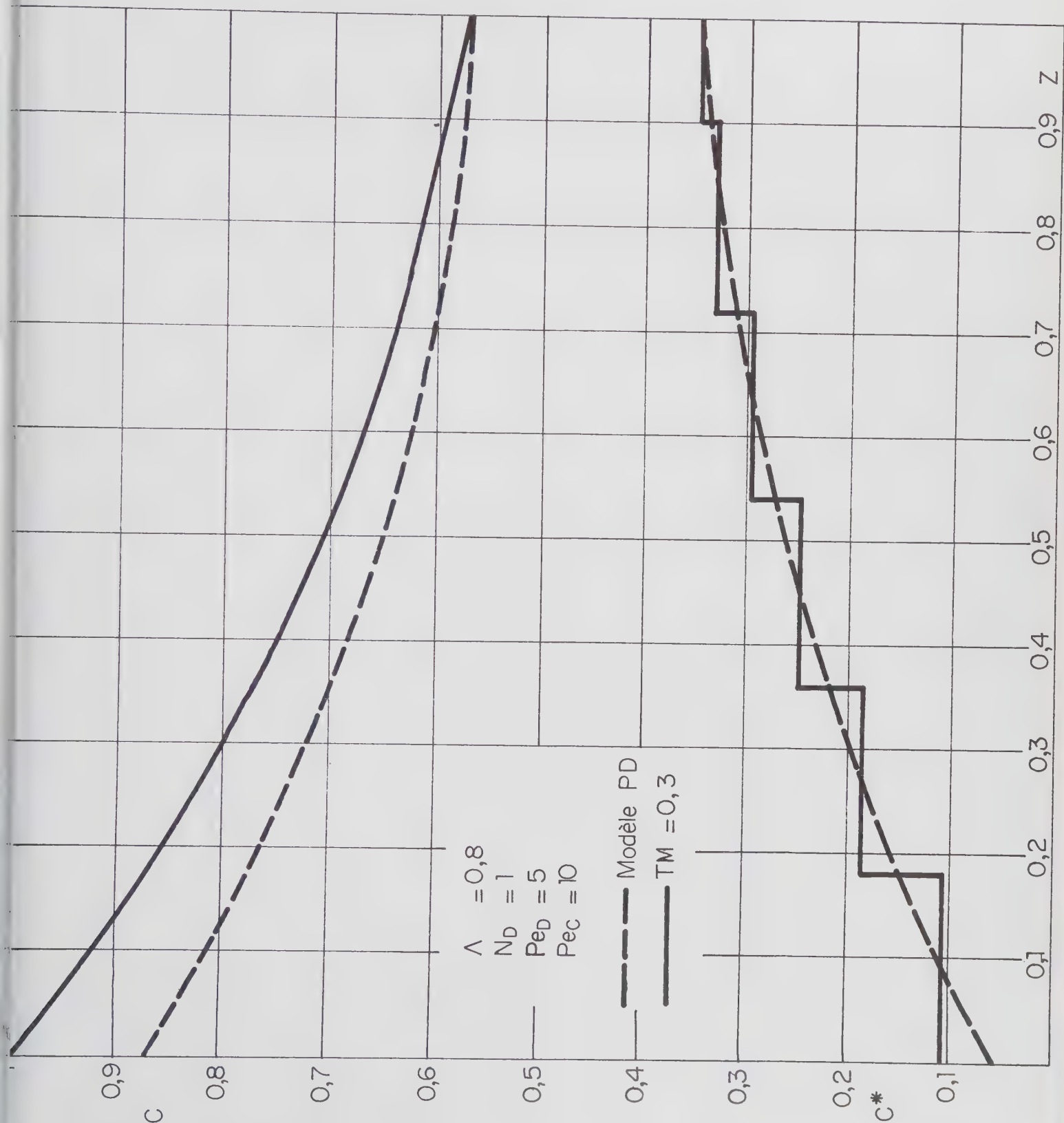
Le nombre n de mélangeurs parfaits en série n'est pas obligatoirement entier, la concentration en phase continue dans le dernier étage sera calculée à partir de l'efficacité de Murphree globale et de l'équation de bilan pour tout l'appareil :

$$E_M = \frac{1 - C_s}{1 - C_s^*} \text{ et } \Lambda (1 - C_s) = C_s^* \quad (\text{IV-65})$$

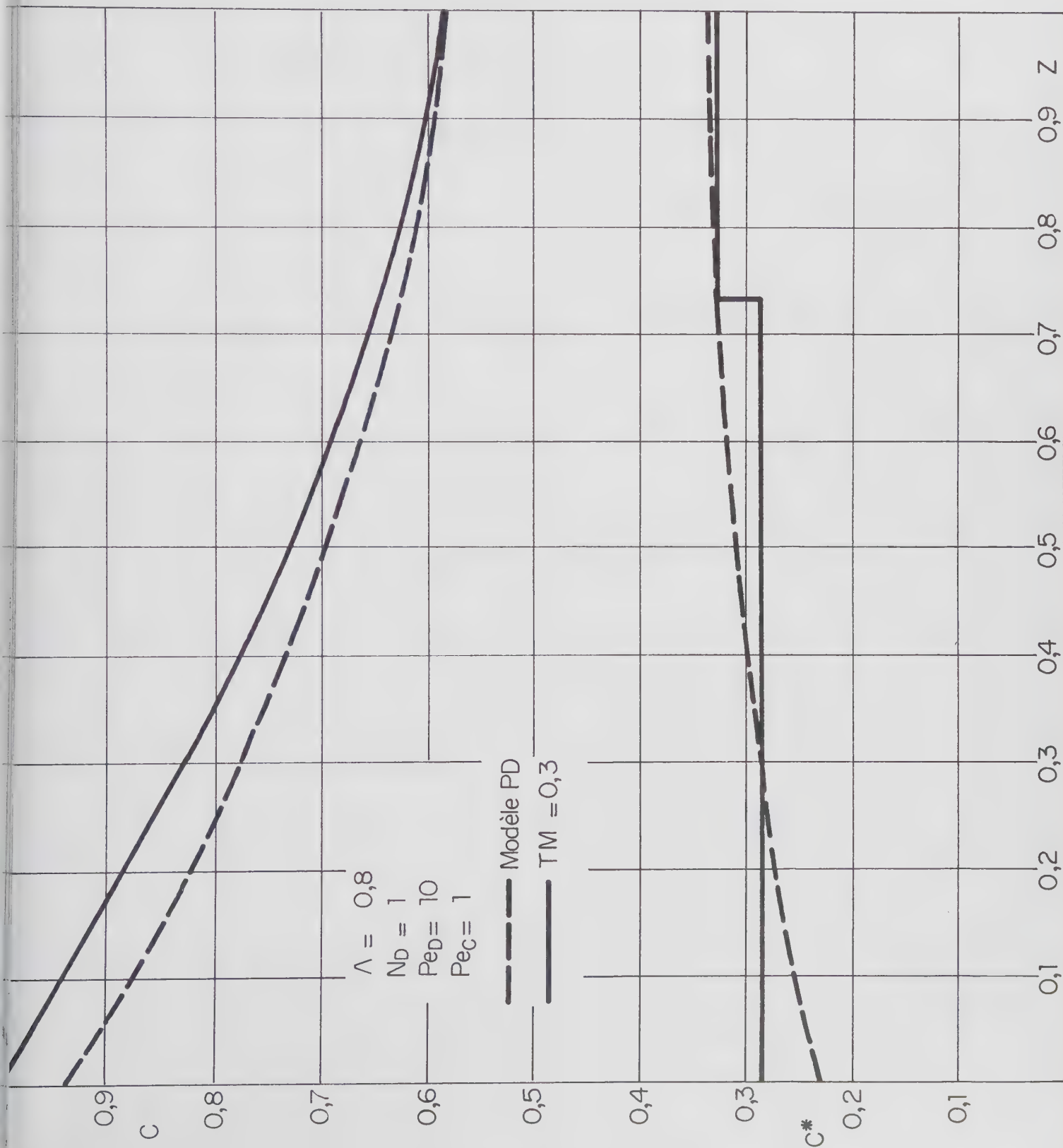
Les Figures 48 à 50 présentent des exemples de profil de concentration. Pour ces figures les variances du pic pour chaque phase ont été exprimées en nombre de Peclet pour comparer avec le modèle PD. Sur la première, le modèle proposé a été calculé pour $TM = 0$ et pour $TM = 1$. Sur les deux autres seulement les courbes pour $TM = 0,3$ ont été portées pour cette fraction (0,7) de phase dispersée à l'arrêt, on obtient sensiblement les mêmes efficacités.



- FIGURE 48 -
 PROFILS DE CONCENTRATIONS



. FIGURE 49 .
 PROFILS DE CONCENTRATIONS



- FIGURE 50 -
 PROFILS DE CONCENTRATIONS

Ces figures montrent clairement que le modèle ne donne pas de saut de concentration à l'entrée pour la phase dispersée.

4.44 - Extension aux écoulements à contre-courant

Pour les écoulements à contre-courant, les calculs sont à peu près les mêmes en remplaçant l'efficacité de Hausen par l'efficacité en diagonale pour le contre-courant E_D et l'efficacité de Murphree par l'efficacité E_c .

Selon que le facteur d'extraction Λ est supérieur ou inférieur à l'unité, les correspondances entre E_c et E_D sont différentes, elles sont notées au paragraphe 4.12 b.

Le mélange axial de la phase continue est toujours caractérisé par un nombre de mélangeurs parfaits en série.

Les résultats tant pour l'efficacité que pour les profils de concentrations sont semblables à ceux obtenus pour le co-courant.

4.5 - AIRE INTERFACIALE ET COEFFICIENT DE TRANSFERT

4.51 - Méthodes de mesures

Quelques méthodes ont été proposées pour mesurer l'aire interfaciale, on peut citer :

- la technique de la photographie à haute vitesse et analyse statistique [R 11, V 3, R 6]. Cette méthode permet d'obtenir le diamètre moyen des gouttes et, connaissant la rétention, l'aire interfaciale, elle est difficilement applicable au garnissage même quand il n'y a pas de filets.

- la mesure de la transmission de la lumière [R 11, V 3] . Cette méthode ne peut s'appliquer qu'aux gouttes très petites.
- la méthode chimique étudiée par Sharma et coll. dans de nombreux cas [F 1, J 2, N 1, P 2] et en particulier dans les garnissages [J 2, P 2] . La méthode consiste à mesurer la vitesse globale d'une réaction chimique de cinétique connue. La réaction se passe à l'interface, elle est donc fonction de l'aire interfaciale. La mesure peut se faire, soit par dosage chimique [F 1, J 2, N 1, P 2] , soit par bilan thermique [S 1] .

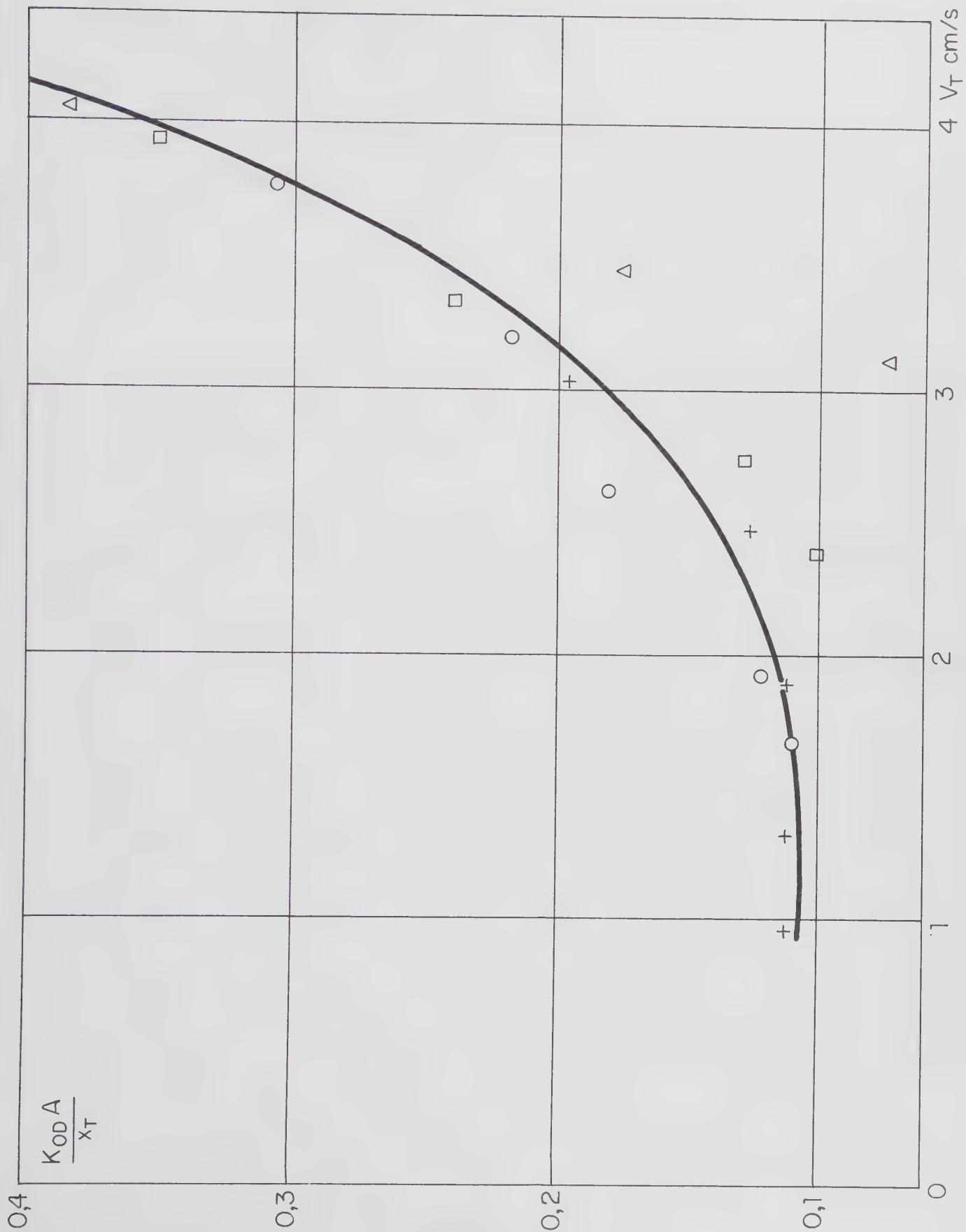
Cette méthode semble la seule applicable au garnissage que nous avons étudié, elle n'a pu être utilisée à cause de la taille de notre matériel et donc de la grande quantité de produits nécessaires.

Les auteurs ont trouvé que l'aire interfaciale variait à peu près linéairement, soit avec le débit de phase dispersée [N 1, P 2] , soit avec la rétention [F 1, S 1] .

4.52 - Variation du coefficient de transfert

On peut avoir une idée de la variation du coefficient de transfert en regardant celle du groupe $K_{OD} \frac{a}{x_T}$. Si on porte ce groupe en fonction de la vitesse totale (Figure 51), on observe que les points se répartissent à quelques exceptions près assez bien autour d'une même courbe.

Si l'aire interfaciale varie linéairement avec la rétention totale, on peut dire que le coefficient de transfert augmente avec la vitesse totale, donc avec la turbulence dans l'appareil.



- FIGURE 51

$\frac{K_{OD} A}{x_T} q$

EN FONCTION DE LA VITESSE TOTALE

C O N C L U S I O N

Le modèle SM rend mieux compte que le modèle PD des courbes de distribution des temps de séjour pour la phase dispersée. Pour le calcul d'une colonne avec transfert de matière, il rend compte du fait qu'il n'y a pas dans une colonne à garnissage à co-courant de mélange en retour pour la phase dispersée et donc pas de saut de concentration pour cette phase.

D'autre part, le calcul de l'efficacité à partir du nombre d'unités de transfert vrai ou le calcul inverse est plus rapide qu'avec le modèle PD qui nécessite, soit le recours au calcul sur ordinateur, soit pour le contre-courant seulement, l'utilisation de méthodes simplifiées.

Le modèle proposé montre que la perte d'efficacité due au mélange axial peut être plus ou moins importante que celle prédite par le modèle PD. En effet, cette diminution des performances d'un appareil est due, non seulement à la variance du pic de distribution de la phase dispersée, mais aussi à la proportion de phase à l'arrêt. Ceci tend à montrer que la queue du pic de sortie a une faible importance sur l'efficacité.

L'utilisation complète de ce modèle nécessite par contre la connaissance précise de la courbe de réponse à une impulsion de traceur de manière à pouvoir déterminer, soit les paramètres du modèle (h_a et h_d), soit la variance et la rétention stationnaire.

- C O N C L U S I O N G E N E R A L E -

L'étude d'une colonne à garnissage dans laquelle deux liquides s'écoulent à co-courant a été effectuée. Elle a permis de mettre en évidence plusieurs faits expérimentaux.

Tout d'abord, il existe au sein de l'écoulement de la phase dispersée une quantité importante de phase à l'arrêt. Cette rétention stationnaire participe à l'écoulement et conditionne le mélange axial de la phase dispersée qui, de ce fait, ne correspond pas aux modèles classiques avec mélange en retour. Dans ce type d'appareil, le mélange axial de la phase continue est plus faible pour des écoulements à co-courant que pour ceux à contre-courant. Enfin l'état de mélange des deux phases est tel qu'il ne diminue que très faiblement l'efficacité de l'appareil.

Cette étude nous a permis également de mettre au point des modèles adaptés à l'écoulement étudié et souvent applicables à d'autres cas.

Le modèle hydrodynamique du pore stratifié prédit la rétention dynamique des écoulements liquide-liquide, ce qui permet d'obtenir la rétention stationnaire par différence avec la rétention totale.

Le modèle statistique de mélange axial sans mélange en retour s'applique bien à l'écoulement de la phase dispersée et il permet de calculer la rétention stationnaire.

Pour le calcul du nombre d'unités de transfert vrai, le modèle présenté utilise le modèle statistique pour la phase dispersée. Il est applicable aux écoulements à co-courant et à ceux à contre-courant. Il montre qu'il n'y

a pas de saut de concentration à l'entrée pour une phase dispersée sans mélange en retour et que l'efficacité dépend non seulement de la variance mais également de la dissymétrie de la courbe de distribution des temps de séjour en phase dispersée.

- ANNEXES -

- P L A N -

<u>ANNEXE A - ETALONNAGES.....</u>	235
A 1 - <u>Photomètres UV.....</u>	235
A 2 - <u>Chromatographie.....</u>	235
A 3 - <u>Coefficient de partage.....</u>	236
 <u>ANNEXE B - MODELE STATISTIQUE.....</u>	245
B 1 - <u>Equation aux dérivées partielles.....</u>	245
B 2 - <u>Equivalence PE - SM.....</u>	247
B 3 - <u>Transformée de Laplace de la DTS.....</u>	248
B 4 - <u>Moments du modèle.....</u>	248
 <u>ANNEXE C - METHODE D'OPTIMISATION.....</u>	250
 <u>ANNEXE D - EQUATION DIFFERENTIELLE DE TRANSFERT EN PHASE DISPERSEE.....</u>	253
D 1 - <u>Modèle diffusionnel.....</u>	253
D 2 - <u>Modèle statistique.....</u>	254

- A N N E X E A -

ETALONNAGES

A 1 - PHOTOMETRES UV

Nous avons utilisé les photomètres UV en continu pour deux types de mesure :

- mesures qualitatives au moyen de l'Uviscan III (Buchler). Cet appareil à deux cellules, couplé à un enregistreur, nous a permis de suivre jusqu'à l'équilibre la concentration en méthyl-éthyl-cétone (MEK) dans l'eau sortant de l'appareil au cours des mesures d'efficacité par la méthode d'injection en continu (cf. 4.21).
- mesures quantitatives au moyen de l'Uvicord II (LKB). Cet appareil couplé à un enregistreur Servotrace a permis d'enregistrer les courbes de distribution des temps de séjour $C_c = f(t)$ pour la phase continue (cf. 3.22) et de vérifier à chaque fois le bilan de traceur. Pour ces expériences, le choix de la méthyl-isobutyl-cétone (MIBK) comme traceur, se justifie par sa faible solubilité dans l'eau qui permet à la fois de la considérer comme un traceur non transférable et d'éviter qu'elle s'accumule dans l'isooctane. D'autre part, la courbe d'étalonnage de l'appareil (Figure 52) montre que la MIBK peut être détectée dans une gamme de concentrations plus large que, par exemple, le benzène.

A 2 - CHROMATOGRAPHIE

Le dosage par chromatographie gaz-liquide a été utilisé pour l'analyse des échantillons nécessaires à la mesure de l'efficacité (cf. 4.21).

L'appareil est un Intersmat couplé à un enregistreur. La méthode utilisée est celle de l'étalon interne. Nous avons ainsi analysé la méthyl-

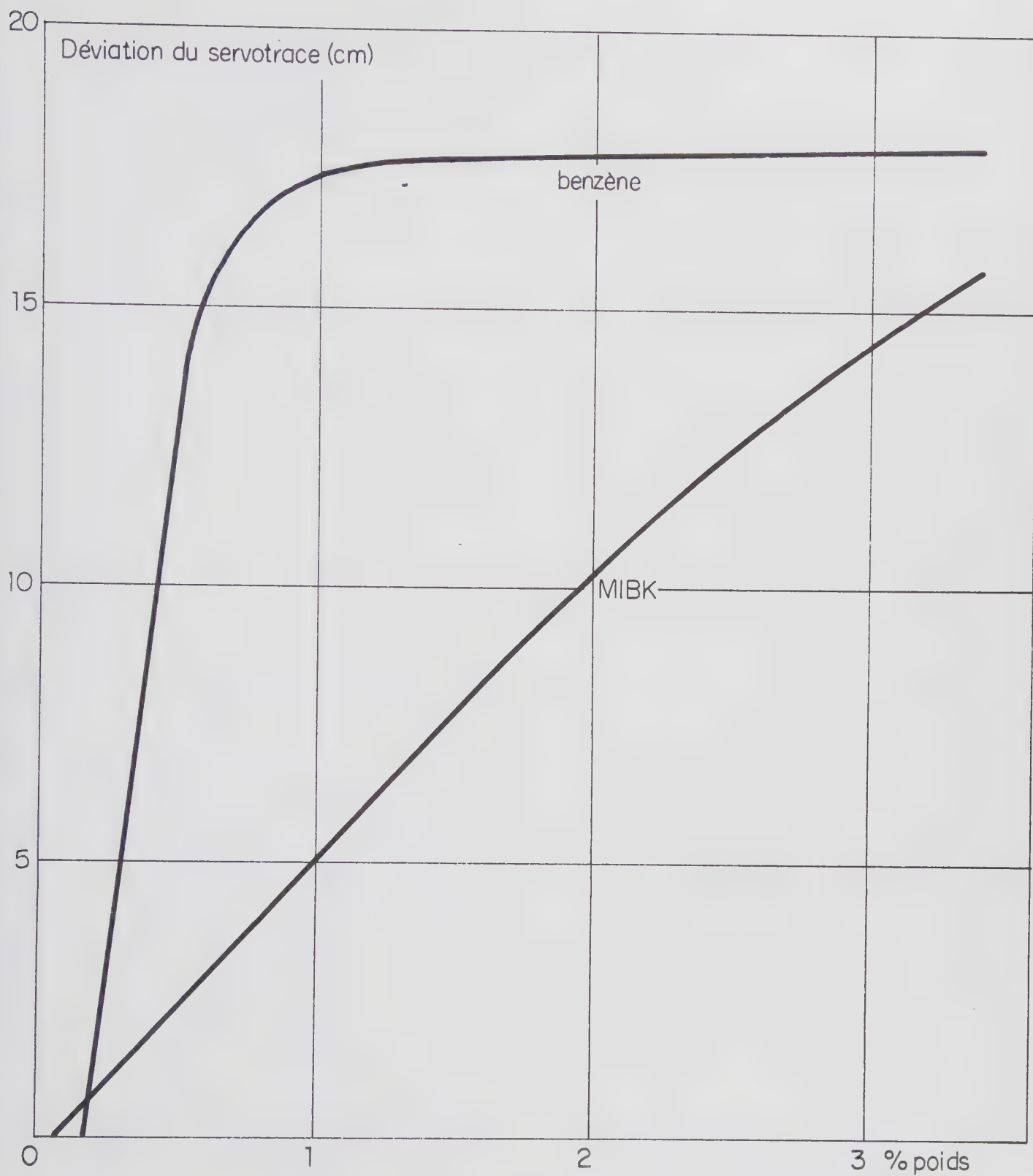
éthyl-cétone dans l'isooctane et dans l'eau avec l'acétone comme étalon interne. La courbe d'étalonnage (Figure 53) est une droite.

A 3 - COEFFICIENT DE PARTAGE

Nous avons mesuré le coefficient de partage de la MEK entre l'eau et l'isooctane en analysant par chromatographie les concentrations des phases en équilibre. Nous avons comparé les résultats à ceux de Moulton et Walkey [M 7] à 25 °C (Figure 54). La Figure 55 présente les courbes de distribution à trois températures pour la gamme de concentrations dans laquelle nous avons travaillé.

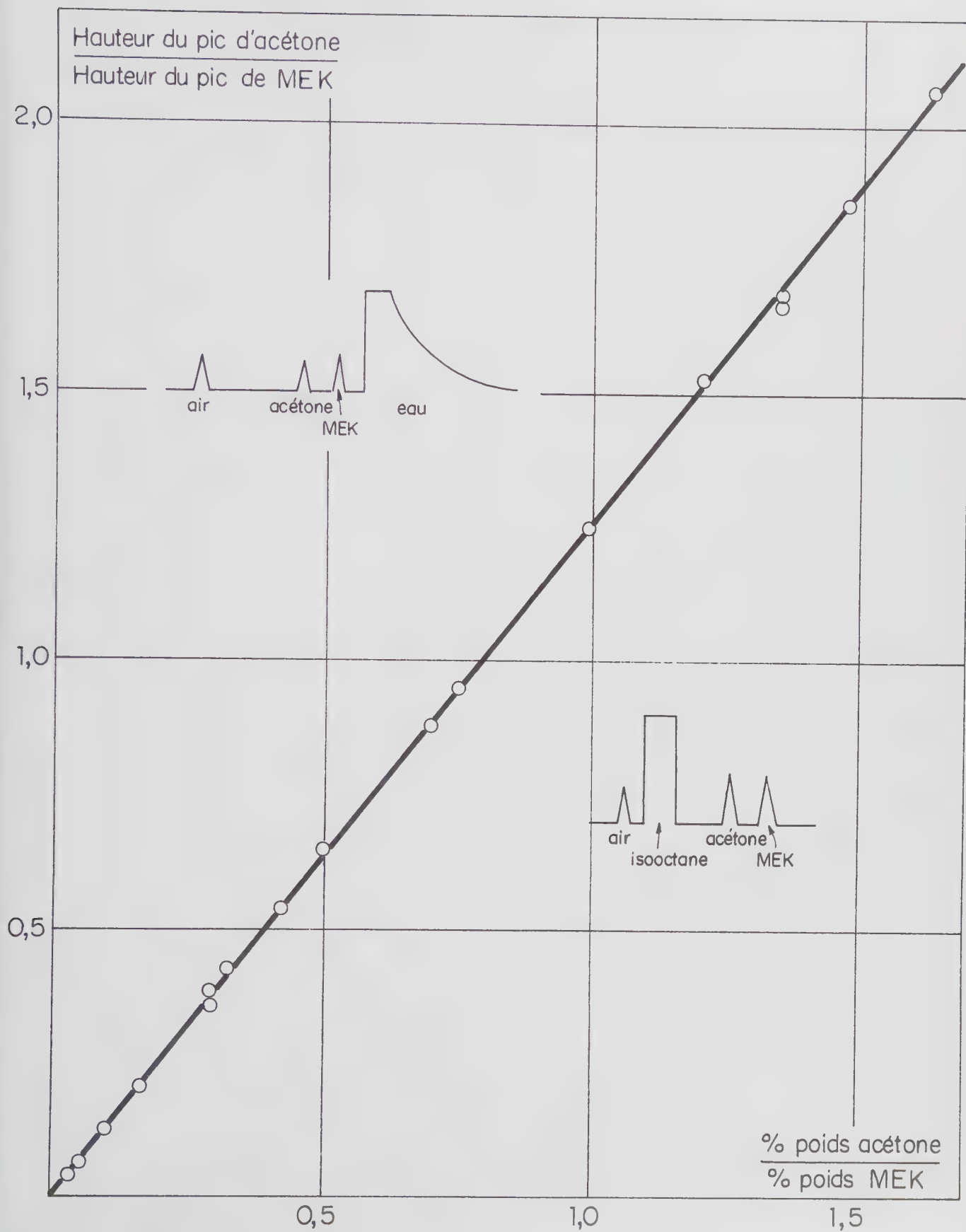
A la température moyenne de nos mesures d'efficacité, le coefficient de partage est :

$$m' = \frac{C'_C}{C'_D} = 0,82$$



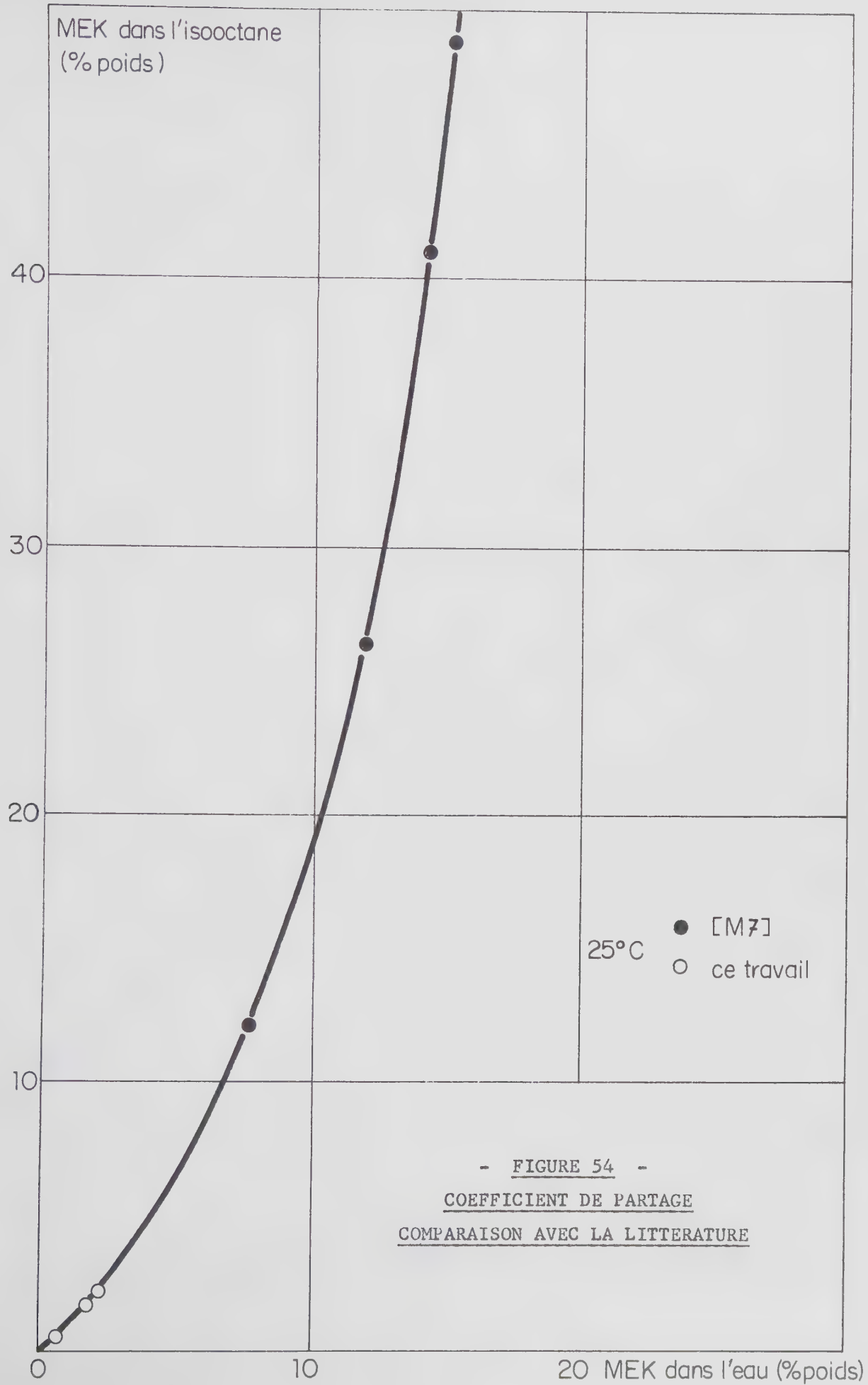
- FIGURE 52 -

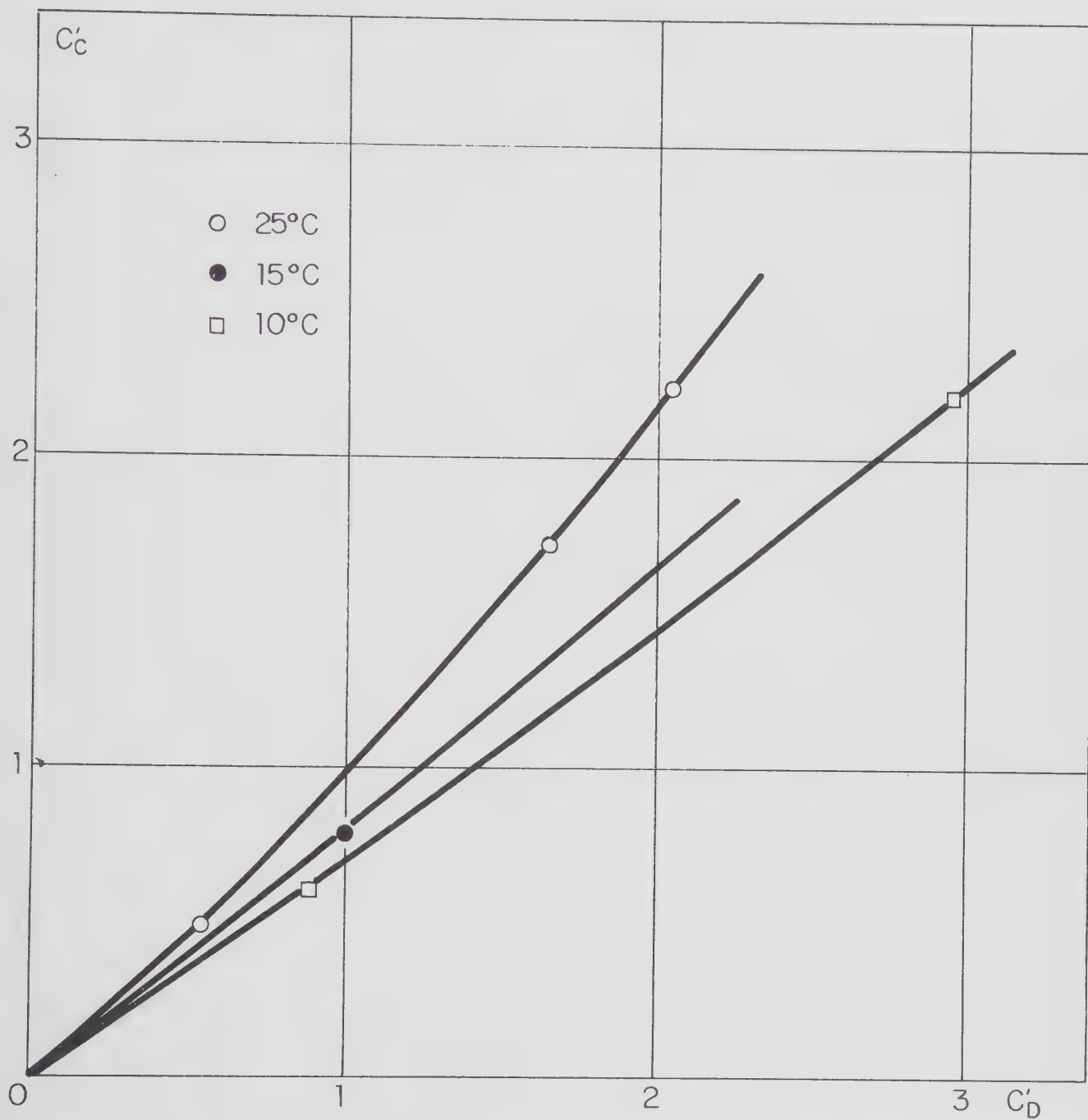
ETALONNAGE DE L'UVICORD II AVEC LE BENZENE ET LA MIBK



- FIGURE 53 -

CHROMATOGRAPHIE - METHODE DE L'ETALON INTERNE





- FIGURE 55 -

COEFFICIENT DE PARTAGE - METHYL-ETHYL-CETONE ENTRE L'EAU ET L'ISOOCTANE

- A N N E X E B -

MODELE STATISTIQUE

B 1 - EQUATION AUX DERIVEES PARTIELLES

La fonction de distribution des temps de séjour du modèle statistique est (éq. III-16) avec $r' = r + 1$:

$$C(t_s) = \exp \left[- (h_d t_s + h_a t_m) \right] \sum_{r'=0}^{\infty} \frac{(h_a h_d t_m)^{r'+1} t_s^{r'}}{r'! (r'+1)!} \quad (B-1)$$

On passe des coordonnées (t_s, t_m) aux coordonnées (z, t) par le système de relations :

$$\begin{aligned} t &= t_m + t_s \\ z &= v t_m \end{aligned}$$

v représente la vitesse réelle des gouttes $\frac{U_o}{\epsilon_{x_d}}$.

On va montrer qu'il existe une relation simple entre les dérivées partielles en $\frac{\partial}{\partial t}$, $\frac{\partial}{\partial z}$ et $\frac{\partial^2}{\partial z \partial t}$ de C .

$$\frac{\partial C}{\partial z} = \frac{1}{v} \frac{\partial C}{\partial t_m} \quad (B-2)$$

$$-\frac{\partial C}{\partial z} = -\frac{h_a}{v} C + \frac{1}{v} \exp \left[- (h_d t_s - h_a t_m) \right] \sum_{r'=0}^{\infty} \frac{(h_a h_d)^{r'+1} t_m^{r'} t_s^{r'}}{r'! r'!} \quad (B-3)$$

$$\text{posons } A = - h_d t_s - h_a t_m \quad (B-4)$$

$$\begin{aligned}
 - \frac{\partial^2 C}{\partial z \partial t_s} = & - \frac{h_a}{v} \frac{\partial C}{\partial t_s} + \frac{1}{v} \exp(A) \sum_{r'=1}^{\infty} \frac{(h_a h_d)^{r'+1} t_m^{r'} t_s^{r'-1}}{(r'-1)! r'!} \\
 & - \frac{h_d}{v} \exp(A) \sum_{r'=0}^{\infty} \frac{(h_a h_d)^{r'+1} t_m^{r'} t_s^{r'}}{r'! r'!} \quad (B-5)
 \end{aligned}$$

le deuxième terme de (B-5) peut s'écrire :

$$\frac{1}{v} h_a h_d \exp(A) \sum_{r'=1}^{\infty} \frac{(h_a h_d)^{r'} t_m^{r'} t_s^{r'-1}}{(r'-1)! r'!} \quad (B-6)$$

Soit $r'' = r'-1$ (B-6) devient :

$$\frac{1}{v} h_a h_d \exp(A) \sum_{r''=0}^{\infty} \frac{(h_a h_d t_m)^{r''+1} t_s^{r''}}{r''! (r''+1)!} = \frac{1}{v} h_a h_d C \quad (B-7)$$

De la même manière le troisième terme de (B-5) peut s'écrire tenant compte de la relation (B-3).

$$- h_d \frac{\partial C}{\partial z} - \frac{h_d h_a}{v} C \quad (B-8)$$

et (B-5) devient :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial z \partial t_s} = - \frac{h_a}{v} \frac{\partial C}{\partial t_s} + \frac{1}{v} h_a h_d C - h_d \frac{\partial C}{\partial z} - \frac{h_d h_a}{v} C \quad (B-9)$$

d'où

$$\frac{\partial^2 C}{\partial z \partial t_s} + \frac{h_a}{v} \frac{\partial C}{\partial t_s} + h_d \frac{\partial C}{\partial z} = 0 \quad (B-10)$$

On passe des variables (z, t_s) aux variables (z, t) en posant :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t_s} \right)_z = \left(\frac{\partial}{\partial t} \right)_z \quad (B-11)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} \right)_{t_s} = \left(\frac{\partial}{\partial z} \right)_t + \frac{1}{v} \left(\frac{\partial}{\partial t} \right)_z$$

$$\frac{1}{v} \frac{\partial^2 C}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z \partial t} + \frac{1}{v} (h_a + h_d) \frac{\partial C}{\partial t} + h_d \frac{\partial C}{\partial z} = 0 \quad (B-12)$$

La fonction de distribution (B-1) vérifie l'équation aux dérivées partielles (B-12).

B 2 - EQUIVALENCE PE-SM

Le modèle PE [H 4, H 5, V 6] est représenté par le système d'équations (où N et φ sont les paramètres et C_1 et C_2 les concentrations en phase dynamique et dans les zones stagnantes) :

$$v \frac{\partial C_1}{\partial z} + \frac{Nv}{L} (C_1 - C_2) + \frac{\partial C_1}{\partial t} = 0$$

$$- \frac{Nv}{L} \frac{\varphi}{1-\varphi} (C_1 - C_2) + \frac{\partial C_2}{\partial t} = 0 \quad (B-13)$$

Le système (B-13) peut se réduire à une équation portant sur C_1 :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial^2 C_1}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 C_1}{\partial z \partial t} + \frac{N}{L} + \frac{N\varphi}{L(1-\varphi)} \frac{\partial C_1}{\partial t} + \frac{Nv}{L} \frac{\varphi}{1-\varphi} \frac{\partial C_1}{\partial z} = 0 \quad (B-14)$$

Les équations (B-14) et (B-12) sont équivalentes à condition de poser :

$$\frac{Nv}{L} = h_a \quad \text{et} \quad \frac{Nv \varphi}{L (1 - \varphi)} = h_d \quad (\text{B-15})$$

On obtient ainsi les relations d'équivalence :

$$N = h_a t_m \quad \text{et} \quad \varphi = \frac{h_d}{h_a + h_d} \quad (\text{B-16})$$

Cette équivalence se retrouve en chromatographie [L 6].

B 3 - TRANSFORMÉE DE LAPLACE DE LA FONCTION DE DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR

La transformée de Laplace de l'équation (B-12) est en prenant l'origine des temps à t_m :

$$\bar{C}_{t_m} = \exp \left(- \frac{h_a t_m p}{h_d + p} \right) \quad (\text{B-17})$$

Si on prend l'origine des temps à $t = 0$, on obtient :

$$\bar{C}_0 = \exp \left[- t_m p \left(1 + \frac{h_a}{h_d + p} \right) \right] \quad (\text{B-18})$$

B 4 - MOMENTS DU MODELE

Les moments par rapport à l'origine $t = t_m$ peuvent être calculés à partir de la transformée de Laplace :

$$\mu_n = (-1)^n \left(\frac{d^n \bar{C}}{d p^n} \right) = \frac{\int_0^\infty t_s^n C(t_s) dt_s}{\int_0^\infty C(t_s) dt_s} \quad (\text{B-19})$$

$$\bullet \quad \mu_1 = \left(\frac{d\bar{C}}{dp} \right) = t_m \frac{h_a}{h_d} \quad (B-20)$$

$$\text{temps moyen } \bar{t} = t_m + t_m \frac{h_a}{h_d} \quad (\text{secondes}) \quad (B-21)$$

$$\bullet \quad \mu_2 = \left(\frac{d^2 \bar{C}}{dp^2} \right) = \frac{2 h_a t_m}{h_d^2} + \frac{h_a^2 t_m^2}{h_d^2} \quad (B-22)$$

$$\text{variance centrée } \sigma^2 = \mu_2 - \mu_1^2 = \frac{2 h_a t_m}{h_d^2} (s^2) \quad (B-23)$$

$$\text{variance centrée réduite } \left(\frac{\sigma}{\bar{t}} \right)^2 = \frac{2 h_a}{t_m (h_a + h_d)^2} \quad (B-24)$$

$$\bullet \quad \mu_3 = - \left(\frac{d^3 \bar{C}}{dp^3} \right) = \frac{6 h_a t_m}{h_d^3} + \frac{h_a^3 t_m^3}{h_d^3} + \frac{6 h_a^2 t_m^2}{h_d^3} \quad (B-25)$$

$$\text{moment centré d'ordre 3 } \mu_{o3} = \mu_3 - 3\mu_1\mu_2 - 2\mu_1^3$$

$$\mu_{o3} = \frac{6 h_a t_m}{h_d^3} (s^3) \quad (B-26)$$

- A N N E X E C -

METHODE D'OPTIMISATION

La méthode d'optimisation que nous avons utilisée pour ajuster les courbes de distribution expérimentales aux courbes théoriques a été présentée par Renon et coll. [R 2] .

Ainsi dans le cas du modèle statistique, l'optimisation consiste à trouver les trois paramètres h_a , h_d , t_m qui rendent minimale la somme des carrés des écarts entre la courbe mesurée et la courbe calculée.

Soit p_i les paramètres, C_{expj} et t_{expj} , les coordonnées des points (une vingtaine) choisis sur la courbe expérimentale et C_j^P les valeurs calculées par l'équation de distribution pour $t_j = t_{expj}$. La somme des carrés des écarts sera pour un triplet de paramètres p_i :

$$SQ = \sum_j (C_{expj} - C_j^P)^2 \quad (C-1)$$

La fonction SQ est une fonction non linéaire des paramètres p_i par l'intermédiaire des valeurs calculées C_j^P . Les valeurs des paramètres qui donnent à SQ la valeur minimale satisfont le système d'équations :

$$\left(\frac{\partial SQ}{\partial p_i} \right)_{p_{j \neq i}} = 0 \quad i = 1, 2, 3 \quad (C-2)$$

La résolution du système (C-2) se fait sur ordinateur par la méthode de Newton de résolution des systèmes non linéaires. Cette méthode itérative consiste à remplacer le système d'équations non linéaires par un système

linéaire qui lui est équivalent au voisinage d'un jeu initial de paramètres p_i^0 .

En effet, on peut écrire pour un point quelconque avec
 $D_j = C_{\exp j} - C_j^P$.

$$C(p_i + dp_i) = C(p_i^0) + \frac{\partial C}{\partial p_1^0} dp_1 + \frac{\partial C}{\partial p_2^0} dp_2 + \frac{\partial C}{\partial p_3^0} dp_3 \quad (C-3)$$

$$SQ = \sum (D_j - \frac{\partial C}{\partial p_1^0} dp_1 - \frac{\partial C}{\partial p_2^0} dp_2 - \frac{\partial C}{\partial p_3^0} dp_3)^2 \quad (C-4)$$

En négligeant les termes du deuxième ordre (C-2) devient :

$$\sum 2 \left(D_j - \frac{\partial C}{\partial p_1^0} dp_1 - \frac{\partial C}{\partial p_2^0} dp_2 - \frac{\partial C}{\partial p_3^0} dp_3 \right) \frac{\partial C}{\partial p_i} = 0 \quad i = 1, 2, 3 \quad (C-5)$$

En remplaçant par des accroissements finis les différentielles du système (C-5) et en calculant numériquement les dérivées partielles, on obtient le système linéaire :

$$\begin{aligned} \sum \left(\frac{\partial C}{\partial h_a} \right)^2 \Delta h_a + \sum \left(\frac{\partial C}{\partial h_d} \right) \left(\frac{\partial C}{\partial h_a} \right) \Delta h_d + \sum \left(\frac{\partial C}{\partial t_m} \right) \left(\frac{\partial C}{\partial h_a} \right) \Delta t_m &= \\ &= \sum D_j \frac{\partial C}{\partial h_a} \\ \sum \left(\frac{\partial C}{\partial h_a} \right) \left(\frac{\partial C}{\partial h_d} \right) \Delta h_a + \sum \left(\frac{\partial C}{\partial h_d} \right)^2 \Delta h_d + \sum \left(\frac{\partial C}{\partial t_m} \right) \left(\frac{\partial C}{\partial h_d} \right) \Delta t_m &= \\ &= \sum D_j \frac{\partial C}{\partial h_d} \\ \sum \left(\frac{\partial C}{\partial h_a} \right) \left(\frac{\partial C}{\partial t_m} \right) \Delta h_a + \sum \left(\frac{\partial C}{\partial h_d} \right) \left(\frac{\partial C}{\partial t_m} \right) \Delta h_d + \sum \left(\frac{\partial C}{\partial t_m} \right)^2 \Delta t_m &= \\ &= \sum D_j \frac{\partial C}{\partial t_m} \end{aligned} \quad (C-6)$$

La résolution du système (C-6) donne les accroissements des paramètres $\Delta h_a, \Delta h_d, \Delta t_m$ du modèle. Le nouveau jeu de paramètres obtenu est plus proche de la solution. On itère jusqu'à ce que la précision demandée soit obtenue.

Pour obtenir une convergence sûre, on utilise une méthode de sous-relaxation. En effet les incréments Δp_i peuvent être trop grands et faire varier les paramètres au-delà du minimum. On multiplie alors tous les incréments par le même nombre inférieur à l'unité et on recommence le calcul avec ces nouvelles valeurs initiales. Un autre type de sous-relaxation intervient quand les incréments font sortir les paramètres de leur domaine d'existence (h_a, h_d ou t_m négatif par exemple).

Quand le minimum n'est pas très prononcé, les valeurs obtenues des paramètres dépendent des valeurs initiales. Il faut résoudre cette difficulté dans chaque cas particulier, en essayant de donner comme valeurs initiales des valeurs proches de l'optimum.

- A N N E X E D -

EQUATION DIFFERENTIELLE DE TRANSFERT EN PHASE DISPERSEE

Pour établir l'équation différentielle de transfert en phase dispersée, il faut expliciter le terme qui fait intervenir la fonction de distribution des temps de séjour dans l'équation :

$$- \int_0^{\infty} \left[C \frac{\partial}{\partial t} f(t, z) \right] dt + \frac{K_{oD} \alpha}{\varepsilon_{x_T}} (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (D-1)$$

qui a été établie dans le texte (équation IV-42).

D 1 - MODELE DIFFUSIONNEL

Dans le cas du modèle diffusionnel, la fonction de distribution des temps de séjour vérifie l'équation :

$$\varepsilon_{x_T} \frac{\partial}{\partial t} f + U_o \frac{\partial}{\partial z} f - E \frac{\partial^2}{\partial z^2} f = 0 \quad (D-2)$$

En remplaçant dans l'équation (D-1) le terme $\frac{\partial}{\partial t} f$ par son expression déduite de l'équation (D-2), on obtient :

$$\int_0^{\infty} \frac{C}{\varepsilon_{x_T}} \left(-E \frac{\partial^2}{\partial z^2} f + U_o \frac{\partial}{\partial z} f \right) dt + \frac{K_{oD} \alpha}{\varepsilon_{x_T}} (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (D-3)$$

Si un intervalle $z, z + dz, C^*$ peut être considéré comme constant (en excluant les points de discontinuité en C^*), C n'est fonction que de t sur cet intervalle et par suite il est possible de commuter les opérateurs de dérivation et d'intégration. L'équation (D-3) ne porte plus alors que sur

la variable $\tilde{C} = \int_0^{\infty} f(z, t) c(t) dt$ et on retrouve l'équation (IV-34).

$$- E \frac{d^2}{dz^2} \tilde{C} + U_0 \frac{d}{dz} \tilde{C} + K_{oD} a (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (D-4)$$

D 2 - MODELE STATISTIQUE

Considérons à présent la distribution des temps de séjour obtenue par le modèle SM. D'après l'annexe B, elle vérifie l'équation aux dérivées partielles :

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} f + (h_a + h_d) \frac{\partial f}{\partial t} + v \frac{\partial^2 f}{\partial z \partial t} + v h_d \frac{\partial f}{\partial z} = 0 \quad (D-5)$$

Remplaçons v par sa valeur $v = (1 + \frac{h_a}{h_d}) \frac{U_0}{\epsilon_{x_T}}$:

$$\frac{\epsilon_{x_T}}{h_a + h_d} \frac{\partial^2}{\partial t^2} f + \epsilon_{x_T} \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{U_0}{h_d} \frac{\partial^2 f}{\partial z \partial t} + U_0 \frac{\partial f}{\partial z} = 0 \quad (D-6)$$

Appelons $\ominus$ l'opérateur :

$$\ominus = \frac{\epsilon_{x_T}}{h_a + h_d} \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{U_0}{h_d} \frac{\partial^2}{\partial z \partial t} + U_0 \frac{\partial}{\partial z} \quad (D-7)$$

et désignons par χ l'expression :

$$\chi = -\epsilon_{x_T} \int_0^{\infty} C \left[\frac{\partial}{\partial t} f \right] dt = \int_0^{\infty} C \left[\ominus f \right] dt \quad (D-8)$$

Si C^* peut être considéré comme constant sur l'intervalle $z, z + dz$, C n'est fonction que de t sur cet intervalle. L'expression (D-8) peut être alors transformée et devient :

$$\chi = \left[\begin{array}{c} \ominus \\ \tilde{C} \end{array} \right] - \int_0^{\infty} \frac{\epsilon_{x_T}}{h_a + h_d} f \left(\frac{d^2}{dt^2} C \right) dt - 2 \int_0^{\infty} \frac{\epsilon_{x_T}}{h_a + h_d} \left(\frac{\partial f}{\partial t} \frac{dC}{dt} \right) dt - \frac{U_o}{h_d} \int_0^{\infty} \frac{dC}{dt} \frac{\partial f}{\partial z} dt \quad (D-9)$$

Compte tenu de l'équation (IV-40) :

$$\frac{d^2}{dt^2} C = \left(\frac{K_{oD} a}{\epsilon_{x_T}} \right) (C - C^*) \quad (D-10)$$

Ainsi :

$$\chi = \left[\begin{array}{c} \ominus \\ \tilde{C} \end{array} \right] - 2 \frac{K_{oD} a}{\epsilon_{x_T} (h_a + h_d)} \chi - \frac{(K_{oD} a)^2}{\epsilon_{x_T} (h_a + h_d)} (\tilde{C} - C^*) + \frac{U_o}{h_d} \frac{K_{oD} a}{\epsilon_{x_T}} \frac{\partial \tilde{C}}{\partial z} \quad (D-11)$$

Soit encore :

$$\chi = \frac{1}{1 + 2 \frac{K_{oD} a}{\epsilon_{x_T} (h_a + h_d)}} \left\{ \left[\begin{array}{c} \ominus \\ \tilde{C} \end{array} \right] - \frac{(K_{oD} a)^2}{\epsilon_{x_T} (h_a + h_d)} (\tilde{C} - C^*) + \frac{U_o}{h_d} \frac{K_{oD} a}{\epsilon_{x_T}} \frac{\partial \tilde{C}}{\partial z} \right\} \quad (D-12)$$

La relation (D-1) devient :

$$\chi + K_{oD} a (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (D-13)$$

Comme $\left[\begin{array}{c} \ominus \\ \tilde{C} \end{array} \right] = U_o \frac{\partial}{\partial z} \tilde{C}$ (D-13) devient :

$$\frac{\epsilon_{x_T}}{\epsilon_{x_T} (h_a + h_d) + 2 K_{oD} a} \left\{ U_o (h_a + h_d) \frac{\partial}{\partial z} \tilde{C} + \frac{U_o}{\epsilon_{x_T}} K_{oD} a \left(1 + \frac{h_a}{h_d} \right) \frac{\partial}{\partial z} \tilde{C} - \frac{(K_{oD} a)^2}{\epsilon_{x_T}} (\tilde{C} - C^*) \right\} + K_{oD} a (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (D-14)$$

En regroupant les termes en $\frac{\partial \tilde{C}}{\partial z}$ et en $(\tilde{C} - C^*)$, on obtient l'équation (IV-43) :

$$U_o \frac{d}{dz} \tilde{C} + K_{oD} a \left[\frac{1 + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T (h_a + h_d)}}{1 + \frac{K_{oD} a}{\epsilon x_T h_d}} \right] (\tilde{C} - C^*) = 0 \quad (D-15)$$

- B I B L I O G R A P H I E -

- B 1 - BAKOS M. et CHARPENTIER J.C.
Chem. Eng. Sci. - 25 - 1822 - (1970)
- B 2 - BUFFHAM B.A. and GIBILARO L.G.
Chem. Eng. J. - 1 - 31 - (1970)
- B 3 - BUFFHAM B.A., GIBILARO L.G. and RATHOZ M.N.
A.I.Ch.E. J. - 16 - 218 - (1970)
- B 4 - BURKE S.P. and PLUMMER W.B.
I.E.C. - 20 - 1196 - (1928)
- C 1 - CAIRNS E.J. and PRAUSNITZ J.M.
Chem. Eng. Sci. - 12 - 20 - (1960)
- C 2 - CARMAN P.C.
Trans. Inst. Chem. Eng. London - 15 - 150 - (1937)
- C 3 - CHARPENTIER J.C.
Thèse - Université de Nancy - (1968)
- C 4 - CHARPENTIER J.C., PROST C. et LE GOFF P.
Chem. Eng. Sci. - 24 - 1777 - (1969)
- D 1 - DANCKWERTS P.V.
Chem. Eng. Sci. - 2 - 1 - (1953)
- D 2 - DEFIVES D. et ROJEY A.
Cours de Transfert de Matière ENSPM - Rapport IFP n° 19 029 - (1971)
- D 3 - DEFIVES D. et ROJEY A.
Rapport n° 17 969 - (1970)
- E 1 - ERGUN S.
CEP - 48 - 89 - (1952)
- F 1 - FERNANDES J.B. and SHARMA M.M.
Chem. Eng. Sci. - 22 - 1267 - (1967)

- G 1 - GAYLER R. and PRATT H.R.C.
Trans. A.I.Ch.E. - 29 - 110 - (1951)
- G 2 - GAYLER R., ROBERTS N.W. and PRATT H.R.C.
Trans. A.I.Ch.E. - 31 - 57 - (1953)
- G 3 - GELBE H.
Chem. Eng. Sci. - 23 - 1401 - (1968)
- G 4 - GIDDINGS J.C.
"Dynamics of Chromatography" Part I - Marcel Dekker - New-York -
(1965) - p. 68
- G 5 - GRANGE A., REYNIER J.P., DEFIVES D. et RAIMBAULT C.
Chem. Eng. Sci. - 26 - 339 - (1971)
- H 1 - HARTLAND S. and MECKLENBURG J.C.
Chem. Eng. Sci. - 21 - 1209 - (1966)
- H 2 - HAUSEN H.
Chemie Ing. Tech. - 25 - 595 - (1953)
- H 3 - HENNICO A.N., JACQUES G.L. and VERMEULEN T.
U.S. At Energy Comm. Rept. UCRL - 10 696 - (1963)
- H 4 - HOCHMAN J.M. and EFFRON E.
I.E.C. Fund. - 8 - 63 - (1969)
- H 5 - HOOGENDOORN C.J. and LIPS J.
Can. J. Chem. Eng. - 43 - 125 - (1965)
- H 6 - HOVORKA R.B. and KENDALL H.B.
Chem. Eng. Progr. - 56 - 58 - (1960)
- J 1 - JACQUES G.L., COTTER J.E. and VERMEULEN T.
U.S. At. Energy Comm. Rept. UCRL - 8 658 - (1959)
- J 2 - JHAVERI A.S. and SHARMA M.M.
Chem. Eng. Sci. - 23 - 669 - (1968)
- L 1 - LARKINS R.P.
Phil. Doct. Thesis - University of Michigan - (1959)
- L 2 - LARKINS R.P., WHITE R.R. and JEFFREY D.W.
A.I.Ch.E. J. - 7 - 231 - (1961)

- L 3 - LANDAU J., PROCHAZKA J.
Col. Cz. Ch. C. - 31 - 1992 - (1966)
- L 4 - LEACOCK J.A. and CHURCHILL S.W.
A.I.Ch.E. J. - 7 - 196 - (1961)
- L 5 - LESPINASSE B.
Thèse - Université de Nancy - (1962)
- L 6 - LENOIR J.Y.
Thèse - Université de Paris (A paraître)
- L 7 - LEVENSPIEL O. and BISCHOFF K.B.
Adv. Chem. Eng. (Academic Press) - 4 - 95 - (1963)
- L 8 - LEVENSPIEL O. and SMITH W.K.
Chem. Eng. Sci. - 6 - 227 - (1957)
- L 9 - LOCKART R.W. and MARTINELLI R.C.
Chem. Eng. Prog. - 45 - 39 - (1949)
- M 1 - MISEK T. and ROD V.
Papier présenté au II^{ème} Congrès Chisa
- M 2 - MIYAUCHI T., Mc MULLEN A.K. and VERMEULEN T.
U.S. At. Energy Comm. Rept. UCRL - 9112 - (1960)
- M 3 - MIYAUCHI T., VERMEULEN T.
I.E.C. Fund. - 2 - 113 - (1963)
- M 4 - MIYAUCHI T., VERMEULEN T.
I.E.C. Fund. - 2 - 304 - (1963)
- M 5 - MOON J.S., HENNICO A.N. and VERMEULEN T.
U.S. At. Energy Comm. Rept. UCRL - 10 928 - (1963)
- M 6 - Mc MULLEN A.K., MIYAUCHI T. and VERMEULEN T.
U.S. At. Energy Comm. Rept. UCRL - 3 911 - (Suppt) - (1958)
- M 7 - MOULTON R.W. and WALKEY J.E.
Trans. A.I.Ch.E. - 40 - 695 - (1944)
- N 1 - NANDA A.K. and SHARMA M.M.
Chem. Eng. Sci. - 21 - 707 - (1966)

- P 1 - PAVLICA R.T. and OLSON J.H.
I.E.C. - 12 - 45 - (1970)
- P 2 - PURANIK S.A. and SHARMA M.M.
Chem. Eng. Sci. - 25 - 257 - (1970)
- R 1 - REISS L.P.
I.E.C. Proc. Des. and Dev. - 6 - 486 - (1967)
- R 2 - RENON H., ASSELINEAU L., COHEN G. et RAIMBAULT C.
"Calcul sur Ordinateur des Equilibres Liquide-Vapeur et Liquide-
Liquide - Editions Technip - Paris - (1971)
- R 3 - REYNIER J.P. et CHARPENTIER J.C.
Chem. Eng. Sci. - 26 - - (1971)
- R 4 - REYNIER J.P. et ROJEY A.
Soumis à Chem. Eng. J.
- R 5 - REYNIER J.P. et SOICHET B.
Rapport IFP n° 17 285 - (1969)
- R 6 - RIGG R.G. and CHURCHILL S.W.
A.I.Ch.E. J. - 10 - 810 - (1964)
- R 7 - ROJEY A.
A paraître
- R 8 - ROJEY A. et DEFIVES D.
Chem. Eng. Sci. - 26 - 1139 - (1971)
- R 9 - ROD V.
Coll. Cze. Chem. Comm. - 34 - 387 - (1967)
- R10 - ROD V.
Brit. Chem. Eng. - 11 - 483 - (1966)
- R11 - RODGER W.A., TRICE V.G. and RUSHTON J.H.
CEP - 52 - 515 - (1956)
- S 1 - SANTIAGO M. et TRAMBOUZE P.
Chem. Eng. Sci. - 26 - 29 - (1971)
- S 2 - SALLALY M. and REYNIER J.P.
Chem. Eng. Sci. - 25 - 1709 - (1970)

- S 3 - SAUTIN J.F.
Rapport IFP n° 18 385 - (1970)
- S 4 - SLEICHER C.A. Jr.
A.I.Ch.E. J. - 5 - 145 - (1959)
- S 5 - SLEICHER C.A. Jr.
A.I.Ch.E. J. - 6 - 529 - (1960)
- S 6 - STEMERDING S. and ZUIDERWEG F.J.
The Chemical Engineer CE - 156 - (1963)
- S 7 - SWEENEY D.E.
A.I.Ch.E. J. - 13 - 663 - (1967)
- T 1 - TURPIN J.L. and HUNTINGTON R.L.
A.I.Ch.E. J. - 13 - 1196 - (1967)
- V 1 - VAN SWAAIJ W., CHARPENTIER J.C. and VILLERMAUX J.
Chem. Eng. Sci. - 24 - 1083 - (1969)
- V 2 - VERMEULEN T., MOON J.S., HENNICO A. and MIYAUCHI T.
Chem. Eng. Progr. - 62 - 95 - (1966)
- V 3 - VERMEULEN T., WILLIAMS G.M. and LANGLOIS C.E.
Chem. Eng. Progr. - 51 - 85 F - (1955)
- V 4 - VIGLIECCA L. et GOSSE J.
Revue de l'IFP - 17 - 1328 - (1962)
- V 5 - VIGNES A.
Chim. et Ind. Génie Chimique - 95 - 307 - (1966)
- V 6 - VILLERMAUX J. et VAN SWAAIJ W.
Chem. Eng. Sci. - 24 - 1097 - (1969)
- W 1 - WEEKMAN V.W. Jr and MYERS J.E.
A.I.Ch.E. J. - 10 - 951 - (1964)

Deuxième thèse :

**DIFFUSION A TRAVERS UN INTERFACE
EN PRESENCE D'AGENTS TENSIO-ACTIFS ADSORBES**

VU, APPROUVE ET PERMIS D'IMPRIMER

NANCY, le 19 octobre 1971

Le Président du Conseil de l'Université de NANCY I

J.R. HELLUY

